

PCT

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM

Internationales Büro



INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation ⁶ :		(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 99/51589
C07D 401/12, A01N 43/54, 43/40, C07D 409/14, 401/14		A1
		(43) Internationales Veröffentlichungsdatum: 14. Oktober 1999 (14.10.99)
<p>(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP99/01944</p> <p>(22) Internationales Anmeldedatum: 23. März 1999 (23.03.99)</p> <p>(30) Prioritätsdaten: 198 15 026.1 3. April 1998 (03.04.98) DE</p> <p>(71) Anmelder: HOECHST SCHERING AGREVO GMBH [DE/DE]; Mirastrasse 54, D-13509 Berlin (DE).</p> <p>(72) Erfinder: SCHAPER, Wolfgang; Kapellenweg 5c, D-86420 Diedorf (DE). BRAUN, Ralf; Lindenstrasse 3, D-64572 Bittelborn (DE). JAKOBI, Harald; Großer Hasenpfad 80, D-60598 Frankfurt (DE). KRAUTSTRUNK, Gerhard; Franz-Lehar-Weg 48, D-61118 Bad Vilbel (DE). MÄRKL, Martin; Glauburgstrasse 85, D-60318 Frankfurt (DE). ORT, Oswald; Eppenhainer Strasse 14, D-61479 Glashütten (DE). KERN, Manfred; Traminerweg 8, D-55296 Lörzweiler (DE). SANFT, Ulrich; Burlachin Strasse 8, D-65719 Hofheim (DE). BONIN, Werner; Im Schulzehnten 18, D-65779 Kelkheim (DE).</p>		
<p>(81) Bestimmungsstaaten: AE, AL, AM, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CN, CU, CZ, EE, GD, GE, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LT, LV, MD, MG, MK, MN, MX, NO, NZ, PL, RO, RU, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UZ, VN, YU, ZA, ARIPO Patent (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, SZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).</p> <p>Veröffentlicht <i>Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.</i></p>		
<p>(54) Title: SUBSTITUTED PIPERIDINES, METHOD FOR THEIR PREPARATION AND THEIR USE AS PESTICIDES AND FUNGICIDES</p> <p>(54) Bezeichnung: SUBSTITUIERTE PIPERIDINE, VERFAHREN ZU IHRER HERSTELLUNG UND IHRE VERWENDUNG ALS SCHÄDLINGSBEKÄMPFUNGSMITTEL UND FUNGIZIDE</p> <p>(57) Abstract</p> <p>The invention relates to substituted piperidines of formula (I), wherein R¹ represents H, halogen, alkyl, alkyl halide or cycloalkyl; R² and R³ have the meaning given in the description; A represents CH or N; X represents NH, O or S(O)_q, q being equal to 0, 1 or 2; Y and Z represent O, S or optionally substituted imino; m and n are equal to 1, 2, 3, 4, or 5; R⁴ and R^{4'} represent H, alkyl, alkyl halide, halogen or alkoxy; R⁵ represents one or more of the following optionally substituted groups: alkyl, alkenyl, alkynyl, aryl or heterocyclyl, one or more C-units which can be substituted with CO or heteroatom-units. The invention also relates to a method for preparing said compounds, agents containing them and their use as pesticides and fungicides.</p> <p>(57) Zusammenfassung</p> <p>Die Erfindung betrifft substituierte Piperidine der Formel (I), in welcher R¹ H, Halogen, Alkyl, Halogenalkyl oder Cycloalkyl bedeutet; R² und R³ wie in der Beschreibung definiert sind; A CH oder N bedeutet; X NH, O oder S(O)_q mit q=0, 1 oder 2 bedeutet; Y und Z O, oder ggf. substituiertes Imino bedeuten; m und n 1, 2, 3, 4 oder 5 sind; R⁴ und R^{4'} H, Alkyl, Halogenalkyl, Halogen oder Alkoxy bedeuten; R⁵ gegebenfalls substituiertes Alkyl, Alkenyl, Alkynyl, Aryl oder Heterocyclyl bedeutet, worin eine oder mehrere C-Einheiten durch CO oder durch Heteroatom-Einheiten ersetzt sein können; Verfahren zu ihrer Herstellung, diese enthaltende Mittel und ihre Verwendung als Schädlingsbekämpfungsmittel und Fungizide.</p>		

LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

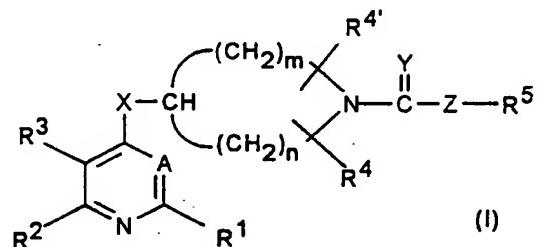
AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Leitland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidschan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland	ML	Mali	TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	MN	Mongolei	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MR	Mauretanien	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MW	Malawi	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MX	Mexiko	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	NE	Niger	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NL	Niederlande	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NO	Norwegen	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NZ	Neuseeland	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	PL	Polen		
CM	Kamerun	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CN	China	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CU	Kuba	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
CZ	Tschechische Republik	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DE	Deutschland	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
DK	Dänemark	LR	Liberia	SG	Singapur		
EE	Estland						

Beschreibung**Substituierte Piperidine, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Schädlingsbekämpfungsmittel und Fungizide**

Die Erfindung betrifft substituierte Piperidine, Verfahren zu ihrer Herstellung und ihre Verwendung als Schädlingsbekämpfungsmittel und Fungizide.

Es ist bereits bekannt, daß bestimmte 4-(Piperidin-4-ylamino)-pyrimidine fungizide akarizide und insektizide Wirkung zeigen (DE-A-42 08 254). Die biologische Wirkung dieser Verbindungen ist jedoch, insbesondere bei niedrigen Aufwandmengen und Konzentrationen, nicht in allen Anwendungsbeispielen zufriedenstellend.

Es wurden (Piperidin-4-ylamino)-heterocyclen der allgemeinen Formel (I) gefunden,



worin die Reste und Gruppen wie unten definiert sind, die sich bei guter Pflanzenverträglichkeit und günstiger Warmblütotoxicität sehr gut zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen, wie Insekten, Spinnentieren, Nematoden, Helminthen und Mollusken, zur Bekämpfung von Endo- und Ektoparasiten auf dem veterinärmedizinischen Gebiet und zur Bekämpfung von Schadpilzen eignen.

Die Erfindung betrifft daher Verbindungen der Formel (I), in welcher

- R¹ Wasserstoff, Halogen, (C₁-C₈)-Alkyl, (C₁-C₈)-Halogenalkyl, (C₁-C₈)-Alkoxy oder (C₃-C₆)-Cycloalkyl bedeutet;
- R² und R³ gleich oder verschieden sind und jeweils Wasserstoff, (C₁-C₈)-Alkyl, (C₂-C₈)-Alkenyl, (C₂-C₈)-Alkinyl, (C₁-C₈)-Alkoxy, Halogen, Hydroxy, Cyano, Nitro, Thiocyanato, (C₁-C₈)-Alkanoyl, (C₁-C₈)-Alkoxycarbonyl, (C₁-C₈)-Akylothio, (C₁-C₈)-Alkylsulfinyl, (C₁-C₈)-Alkylsulfonyl, Amino, (C₁-C₈)-Alkylamino, (C₁-C₈)-Dialkylamino oder (C₃-C₆)-Cycloalkyl bedeuten, wobei in den Alkyl-, Cycloalkyl-, Alkenyl-, Alkinyl-Resten oder den hiervon abgeleiteten Gruppen wie der Alkoxy-, Akylothio-, Alkanoyl-, Alkoxycarbonyl-, Akylothio-, Alkylsulfinyl-, Alkylsulfonyl-, Alkylamino- oder der Dialkylamino-, eine gesättigte Kohlenstoff-Einheit durch eine Heteroatom-Einheit, wie Sauerstoff, S(O)_x, mit x = 0, 1 oder 2 oder Dimethylsilyl ersetzt sein kann und weiterhin in diesen Resten oder den davon abgeleiteten Gruppen bis zu drei Wasserstoffatome durch Halogen, im Falle von Fluor auch alle Wasserstoffatome durch Fluor ersetzt sein können; oder
- R² und R³ zusammen mit den Kohlenstoffatomen, an die sie gebunden sind, einen ungesättigten 5- oder 6-gliedrigen isocyclischen Ring bilden, der, falls es sich um einen 5-Ring handelt, an Stelle von CH₂ ein Sauerstoff- oder Schwefelatom enthalten kann oder der, falls es sich um einen 6-Ring handelt, an Stelle von einer oder zwei CH-Einheiten ein oder zwei Stickstoffatome enthalten kann und der gegebenenfalls durch 1, 2 oder 3 gleiche oder verschiedene Reste substituiert ist und diese Reste (C₁-C₄)-Alkyl, (C₁-C₄)-Halogenalkyl, vorzugsweise Trifluormethyl, Halogen, (C₁-C₄)-Alkoxy oder (C₁-C₄)-Halogenalkoxy bedeuten; oder
- R² und R³ zusammen mit den Kohlenstoffatomen, an die sie gebunden sind, einen gesättigten 5-, 6- oder 7-gliedrigen isocyclischen Ring bilden, der an Stelle von einer oder zwei CH₂-Gruppen Sauerstoff und/oder Schwefel enthalten kann und der gegebenenfalls durch 1, 2 oder 3 (C₁-C₄)-Alkylgruppen substituiert ist;
- A CH oder N bedeutet;

X NH, Sauerstoff oder $S(O)_q$ mit $q = 0, 1$ oder 2 bedeutet;

Y und Z gleich oder verschieden sind und jeweils Sauerstoff, Schwefel oder eine Gruppe NR^5 oder $NR^{5''}$ bedeuten, wobei R^5 und $R^{5''}$ gleich oder verschieden sind und jeweils die nachstehend zu R^5 angegebenen Bedeutungen haben; oder für den Fall, daß Y Schwefel oder eine Gruppe NR^5 bedeutet, Z auch eine direkte Bindung sein kann, oder für den Fall, daß Y eine Gruppe NR^5 bedeutet, R^5 auch zusätzlich Nitro, Cyano, Hydroxy, Alkoxy oder eine Gruppe $NR^{5''}R^{5''}$ bedeuten kann, wobei R^5 und $R^{5''}$ gleich oder verschieden sind und jeweils die nachstehend zu R^5 angegebenen Bedeutungen haben können, m und n gleich oder verschieden sind und die Zahlen 1, 2, 3, 4 oder 5 bedeuten und die Summe aus m und n die Zahl 6 nicht überschreitet;

R^4 und $R^{4''}$ gleich oder verschieden sind und jeweils Wasserstoff, (C_1 - C_4)-Alkyl, (C_1 - C_4)-Halogenalkyl, Halogen oder (C_1 - C_4)-Alkoxy bedeuten;

R^5 Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Aryl, Heterocyclyl bedeutet, wobei die aufgeführten Aryl- oder Heterocyclyl-Reste unsubstituiert oder mit bis zu drei, im Falle von Fluor auch bis zur Maximalanzahl an gleichen oder verschiedenen Resten versehen sein können und in den genannten Alkyl-, Alkenyl- oder Alkinyl-Resten eine oder mehrere, vorzugsweise bis zu drei nicht benachbarte gesättigte Kohlenstoff-Einheiten durch eine Carbonyl-Gruppe oder durch Heteroatom-Einheiten, wie Sauerstoff, $S(O)_x$, mit $x = 0, 1$ oder 2 , NR^6 oder SiR^7R^8 ersetzt sein können, wobei R^6 Wasserstoff, (C_1 - C_4)-Alkyl, (C_1 - C_4)-Alkoxy oder (C_1 - C_4)-Alkanoyl bedeutet und R^7 und R^8 (C_1 - C_4)-Alkyl, bevorzugt Methyl, bedeuten;

und worin darüber hinaus 3 bis 12 Atome dieser gegebenenfalls wie vorstehend modifizierten Kohlenwasserstoff-Reste einen Cyclus bilden können;

und diese Kohlenwasserstoff-Reste mit oder ohne den angegebenen Variationen, gegebenenfalls mit einem oder mehreren, vorzugsweise bis zu drei, im Falle von Fluor bis zur Maximalanzahl an gleichen oder verschiedenen Resten aus der Reihe Halogen, Aryl, Aryloxy, Arylthio, Cycloalkyl, Cycloalkoxy, Cycloalkylthio, Heterocyclyl, Heterocyclyloxy,

Heterocyclithio, Alkanoyl, Cycloalkanoyl, Halogenalkanoyl, Aroyl, Arylalkanoyl, Cycloalkylalkanoyl, Heterocyclalkanoyl, Alkoxycarbonyl, Halogenalkoxycarbonyl, Cycloalkoxycarbonyl, Cycloalkylalkoxycarbonyl, Arylalkoxycarbonyl, Heterocyclalkoxycarbonyl, Aryloxycarbonyl, Heterocyclloxycarbonyl, Alkanoyloxy, Halogenalkanoyloxy, Cycloalkanoyloxy, Cycloalkylalkanoyloxy, Aroyloxy, Arylalkanoyloxy, Heterocycloylalkanoyloxy, Alkylsulfonyloxy, Arylsulfonyloxy, Hydroxy, Cyano, Thiociano oder Nitro substituiert sein können, wobei die cycloaliphatischen, aromatischen oder heterocyclischen Ringsysteme unter den soeben genannten Substituenten unsubstituiert oder mit bis zu drei, im Falle von Fluor auch bis zur Maximalanzahl an gleichen oder verschiedenen Substituenten versehen sein können, und weiterhin, für den Fall, daß Y eine Gruppe NR⁵ bedeutet, R⁵ der Gruppe Y und R⁵ der Gruppe Z zu einem 5-8 gliedrigen heteroaliphatischen Ringsystem verknüpft sein können; oder, für den Fall, daß Z eine Gruppe NR⁵ bedeutet, R⁵ und R⁵ auch cyclisch zu einem 3-8 gliedrigen Ringsystem verknüpft sein kann und in diesem Ringsystem eine gesättigte Kohlenstoffeinheit durch Sauerstoff, Schwefel oder eine Gruppe NG ersetzt sein kann, worin G eine gegebenenfalls substituierte Phenylgruppe, (C₁-C₄)-Alkyl, (C₁-C₄)-Alkanoyl oder (C₁-C₄)-Alkoxycarbonyl bedeutet und dieses Ringsystem gegebenenfalls benzokondensiert sein kann, und deren Tautomere und Salze, vorzugsweise Säureadditionssalze;

- R¹ insbesondere solche Verbindungen, für die Wasserstoff, Halogen, (C₁-C₄)-Alkyl, (C₁-C₄)-Halogenalkyl oder (C₃-C₅)-Cycloalkyl bedeutet;
- R² und R³ gleich oder verschieden sind und jeweils Wasserstoff; (C₁-C₄)-Alkyl, (C₁-C₄)-Halogenalkyl, (C₂-C₄)-Alkenyl, (C₂-C₄)-Halogenalkenyl, (C₂-C₄)-Alkinyl, (C₂-C₄)-Halogenalkinyl, Trimethylsilylalkinyl, (C₁-C₄)-Alkoxy, (C₁-C₄)-Halogenalkoxy, (C₁-C₄)-Alkoxy-(C₁-C₄)-alkyl, (C₁-C₄)-Halogenalkoxy-(C₁-C₄)-alkyl, (C₁-C₄)-Alkoxy-(C₁-C₄)-halogenalkyl, (C₁-C₄)-Halogenalkoxy-(C₁-C₄)-alkyl,

halogenalkyl, Halogen, Hydroxy, (C₁-C₄)-Hydroxyalkyl, (C₁-C₄)-Alkanoyl, (C₁-C₄)-Halogenalkanoyl, (C₃-C₅)-Cycloalkyl, (C₃-C₅)-Halogencycloalkyl, Cyano, (C₁-C₄)-Cyanalkyl, Nitro, (C₁-C₄)-Nitroalkyl, Thiocyno, (C₁-C₄)-Thiocyanalkyl, (C₁-C₄)-Alkoxy carbonyl, (C₁-C₄)-Alkoxy carbonyl-(C₁-C₄)-alkyl, (C₁-C₄)-Halogenalkoxycarbonyl, (C₁-C₄)-Alkylthio, (C₁-C₄)-Alkylthio-(C₁-C₄)-alkyl, (C₁-C₄)-Halogenalkylthio, (C₁-C₄)-Alkylsulfinyl, (C₁-C₄)-Halogenalkylsulfinyl, (C₁-C₄)-Alkylsulfonyl, (C₁-C₄)-Halogenalkylsulfonyl, Amino, (C₁-C₄)-Alkylamino oder (C₁-C₄)-Dialkylamino bedeuten; oder R² und R³ zusammen mit den Kohlenstoffatomen, an die sie gebunden sind, einen ungesättigten 5- oder 6-gliedrigen isocyclischen Ring bilden, der, falls es sich um einen 5-Ring handelt, an Stelle von CH₂ ein Sauerstoff- oder Schwefelatom enthalten kann oder der, falls es sich um einen 6-Ring handelt, an Stelle von einer oder zwei CH-Einheiten ein oder zwei Stickstoffatome enthalten kann und der gegebenenfalls durch 1, 2 oder 3 gleiche oder verschiedene Reste substituiert ist und diese Reste (C₁-C₄)-Alkyl, (C₁-C₄)-Halogenalkyl, vorzugsweise Trifluormethyl, Halogen, (C₁-C₄)-Alkoxy oder (C₁-C₄)-Halogenalkoxy bedeuten; oder R² und R³ zusammen mit den Kohlenstoffatomen, an die sie gebunden sind, einen gesättigten 5-, 6- oder 7-gliedrigen isocyclischen Ring bilden, der an Stelle von einer oder zwei CH₂-Gruppen Sauerstoff und/oder Schwefel enthalten kann und der gegebenenfalls durch 1, 2 oder 3 (C₁-C₄)-Alkylgruppen substituiert ist, und R⁵ (C₁-C₂₀)-Alkyl, (C₂-C₂₀)-Alkenyl, (C₂-C₂₀)-Alkinyl, Aryl oder Heterocyclyl bedeutet, wobei die aufgeführten Aryl- oder Heterocyclyl-Reste unsubstituiert oder mit bis zu drei, im Falle von Fluor auch bis zur Maximalanzahl an gleichen oder verschiedenen Resten versehen sein können und in den genannten Alkyl-, Alkenyl- oder Alkinyl-Resten eine oder mehrere, vorzugsweise bis zu drei nicht benachbarte gesättigte Kohlenstoff-Einheiten durch eine Carbonyl-Gruppe oder durch Heteroatom-Einheiten, wie Sauerstoff, S(O)_x, mit x = 0, 1 oder 2, NR⁶ oder SiR⁷R⁸ ersetzt sein können, wobei R⁶ Wasserstoff, (C₁-C₄)-Alkyl, (C₁-C₄)-Alkoxy oder (C₁-C₄)-Alkanoyl

bedeutet und R⁷ und R⁸ (C₁-C₄)-Alkyl, bevorzugt Methyl, bedeuten, und worin darüber hinaus 3 bis 12 Atome dieser gegebenenfalls wie vorstehend modifizierten Kohlenwasserstoff-Reste einen Cyclus bilden können und diese Kohlenwasserstoff-Reste mit oder ohne die angegebenen Variationen, gegebenenfalls mit einem oder mehreren, vorzugsweise bis zu drei, im Falle von Halogen bis zur Maximalanzahl an gleichen oder verschiedenen Resten aus der Reihe Halogen, Aryl, Aryloxy, Arylthio, (C₃-C₈)-Cycloalkoxy, (C₃-C₈)-Cycloalkylthio, Heterocyclyl, Heterocyclyloxy, (C₃-C₈)-Cycloalkoxyl, (C₁-C₁₂)-Alkanoyl, (C₃-C₈)-Cycloalkanoyl, (C₂-C₁₂)-Heterocyclithio, (C₁-C₁₂)-Alkanoyl, Aryl-(C₁-C₄)-alkanoyl, (C₃-C₈)-Cycloalkyl-(C₁-C₄)-Halogenalkanoyl, Heterocyclyl-(C₁-C₄)-alkanoyl, (C₁-C₁₂)-Alkoxy carbonyl, (C₁-C₁₂)-alkanoyl, (C₃-C₈)-Cycloalkoxycarbonyl, (C₃-C₈)-Cylcoalkyl-Halogenalkoxycarbonyl, (C₃-C₈)-Cycloalkoxycarbonyl, (C₃-C₈)-Cylcoalkyl-(C₁-C₄)-alkoxycarbonyl-, Aryl-(C₁-C₄)-alkoxycarbonyl, Heterocyclyl-(C₁-C₄)-alkoxycarbonyl, Aryloxycarbonyl, Heterocyclyloxycarbonyl, (C₁-C₁₂)-alkanoyloxy, (C₃-C₈)-Cycloalkanoyloxy, (C₂-C₁₂)-Halogenalkanoylalkoxy, (C₃-C₈)-Cycloalkyl-(C₁-C₄)-alkanoyloxy, Aroyloxy, Aryl-(C₁-C₄)-alkanoyloxy, (C₃-C₈)-Cycloalkyl-(C₁-C₄)-alkanoyloxy, (C₁-C₁₂)-Alkylsulfonyloxy, Arylsulfonyloxy, Heterocyclyl-(C₁-C₄)-alkanoyloxy, Hydroxy, Cyano, Thiocyano oder Nitro substituiert sein können, wobei die cycloaliphatischen, aromatischen oder heterocyclischen Ringsysteme unter den soeben genannten Substituenten unsubstituiert oder mit bis zu drei, im Falle von Fluor auch bis zur Maximalanzahl an gleichen oder verschiedenen Substituenten versehen sein können.

Bevorzugt sind Verbindungen der Formel (I), in welchen

R¹ Wasserstoff, Fluor, Chlor oder Methyl bedeutet;

R² (C₁-C₄)-Alkyl, (C₁-C₄)-Alkenyl, (C₁-C₄)-Alkinyl, (C₁-C₄)-Halogenalkyl,

Methoxymethyl oder Cyano bedeutet;

R³ Wasserstoff, Halogen, Methyl, Ethyl, Ethinyl, Vinyl, Halogenvinyl, (C₁-C₂)-

Fluoralkyl, Methoxy, Ethoxy oder Cyano bedeutet; oder

R² und R³ zusammen mit den Kohlenstoffatomen, an die sie gebunden sind,

einen gegebenenfalls substituierten ungesättigten 5- oder 6-gliedrigen Ring

bilden, der im Falle des 5-Rings an Stelle einer CH₂-Einheit ein Schwefelatom enthalten kann; oder R² und R³ zusammen mit den Kohlenstoffatomen an die sie gebunden sind, einen gesättigten 5- oder 6-gliedrigen Ring bilden, der an Stelle einer CH₂-Einheit ein Schwefel- oder ein Sauerstoffatom enthalten kann;

A CH oder N bedeutet;

X NH oder Sauerstoff bedeutet;

Y und Z gleich oder verschieden sind und jeweils Sauerstoff, Schwefel oder eine Gruppe NR⁵ oder NR^{5'} bedeuten;

R⁴ und R^{4'} gleich oder verschieden sind und jeweils Wasserstoff oder Methyl bedeuten;

m und n jeweils die Zahl 2 bedeutet;

insbesondere solche Verbindungen, worin

R¹ Wasserstoff bedeutet;

R² Methyl, Ethyl, Propyl, Isopropyl, (C₁-C₂)-Fluoralkyl, Cyclopropyl oder Methoxymethyl bedeutet;

R³ Halogen, Methyl, Ethyl, Ethinyl, Vinyl, Fluorvinyl, Methoxy, Ethoxy oder Cyano bedeutet; oder

R² und R³ zusammen mit dem Ringsystem, an das sie gebunden sind, das Chinazolin- oder Chinolin-System bilden, das im carbocyclischen Teil durch Fluor substituiert sein kann; oder

R² und R³ zusammen mit den Kohlenstoffatomen an die sie gebunden sind, einen gesättigten 6-gliedrigen Ring bilden, der an Stelle einer CH₂-Gruppe ein Sauerstoff- oder Schwefelatom enthalten kann;

R⁴ und R^{4'} Wasserstoff bedeutet.

Besonders bevorzugt sind solche Verbindungen der Formel (I), worin

R¹ Wasserstoff bedeutet;

R² Methyl, Ethyl, Propyl, Isopropyl, 1-Fluorethyl oder Methoxymethyl bedeutet;

R³ Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Vinyl, Ethinyl oder Methoxy bedeutet; oder, für

den Fall, daß A Stickstoff bedeutet,
R² und R³ zusammen mit dem Ringsystem, an das sie gebunden sind,
das Chinazolin-System bilden, das mit einem Fluoratom substituiert sein
kann;

- A N bedeutet;
X NH bedeutet;
Y und Z Sauerstoff oder Schwefel bedeuten;
R⁴ und R^{4'} Wasserstoff bedeutet;
m und n die Zahl 2 bedeutet.

Am stärksten bevorzugt sind solche Verbindungen der Formel (I), in welcher

- R¹ Wasserstoff bedeutet;
R² Ethyl oder Methoxymethyl bedeutet;
R³ Fluor, Chlor, Brom, Ethinyl oder Methoxy, vorzugsweise Fluor, Chlor, Brom
oder Methoxy bedeutet;
A N bedeutet;
X NH bedeutet;
Y und Z Sauerstoff oder Schwefel, bevorzugt Sauerstoff, bedeuten;
R⁴ und R^{4'} Wasserstoff bedeuten;
m und n die Zahl 2 bedeutet;
R⁵ (C₁-C₂₀)-Alkyl, (C₂-C₂₀)-Alkenyl, (C₂-C₂₀)-Alkinyl, Aryl oder Heterocycl¹
bedeutet, wobei die aufgeführten Aryl- oder Heterocycl¹-Reste unsubstituiert
oder mit bis zu drei, im Falle von Fluor auch bis zur Maximalanzahl an
gleichen oder verschiedenen Resten versehen sein können und in den
genannten Alkyl-, Alkenyl- oder Alkinyl-Resten eine oder mehrere,
vorzugsweise bis zu drei nicht benachbarte gesättigte Kohlenstoff-Einheiten
durch Heteroatom-einheiten, wie Sauerstoff oder SiR⁷R⁸, ersetzt sein können,
wobei R⁷ und R⁸ (C₁-C₄)-Alkyl, bevorzugt Methyl, bedeuten,
und worin darüber hinaus 3 bis 6 Atome dieser gegebenenfalls wie
vorstehend modifizierten Kohlenwasserstoff-Reste einen Cyclus bilden
können und diese Kohlenwasserstoff-Reste mit oder ohne die angegebenen

Variationen, gegebenenfalls mit einem oder mehreren, vorzugsweise bis zu drei, im Falle von Halogen bis zur Maximalanzahl an gleichen oder verschiedenen Resten aus der Reihe Halogen, bevorzugt Fluor, Aryl, Aryloxy, Arylthio, (C₃-C₈)-Cycloalkoxy, (C₃-C₈)-Cycloalkylthio, Heterocycl, Heterocyclxy oder (C₁-C₂)-Alkoxy carbonyl substituiert sein können, wobei die wobei die cycloaliphatischen, aromatischen oder heterocyclischen Ringsysteme unter den soeben genannten Substituenten unsubstituiert oder mit bis zu drei, im Falle von Fluor auch bis zur Maximalanzahl an gleichen oder verschiedenen Substituenten versehen sein können;

insbesondere solche Verbindungen für die

R⁵ (C₁-C₁₅)-Alkyl, Aryl oder Heterocycl im Sinne von heteroaromatisches Ringsystem bedeutet, wobei der Aryl- oder Heterocycl-Rest unsubstituiert oder mit bis zu drei, im Falle von Fluor auch bis zur Maximalanzahl an gleichen oder verschiedenen Resten versehen sein kann und in dem genannten Alkyl-Rest eine oder mehrere, vorzugsweise bis zu drei, nicht benachbarte gesättigte Kohlenstoff-Einheiten durch Sauerstoff ersetzt sein können,
und worin darüber hinaus 3 bis 8 Atome dieses gegebenenfalls wie vorstehend modifizierten Alkyl-Restes einen Cyclus bilden können und dieser Alkyl-Rest mit oder ohne die angegebenen Variationen, gegebenenfalls mit einem oder mehreren Halogenatomen, im Falle von Fluor auch bis Maximalanzahl, oder mit einem Aryl-Rest substituiert sein kann und dieser Aryl-Rest unsubstituiert oder mit bis zu drei, im Falle von Fluor auch bis zur Maximalanzahl, an gleichen oder verschiedenen Substituenten versehen sein kann.

In der obigen Formel ist unter "Halogen" ein Fluor-, Chlor-, Brom- oder Iodatom zu verstehen;

unter dem Ausdruck "(C₁-C₄)-Alkyl" ein unverzweigter oder verzweigter

Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, wie z.B. der Methyl-, Ethyl-, Propyl-, Isopropyl-, 1-Butyl-, 2-Butyl-, 2-Methylpropyl- oder tert.-Butylrest zu verstehen;

unter dem Ausdruck "(C₁-C₈)-Alkyl" die vorgenannten Alkyreste, sowie z.B. der Pentyl-, 2-Methylbutyl-, 1,1-Dimethylpropyl-, Hexyl-, Heptyl-, Octyl-, oder der 1,1,3,3-Tetramethylbutyl-Rest;

unter dem Ausdruck "(C₁-C₂₀)-Alkyl" die vorgenannten Alkyreste, sowie z.B. der Nonyl-, 1-Decyl-, 2-Decyl-, Undecyl-, Dodecyl-, Pentadecyl- oder Eicosyl-Rest;

unter dem Ausdruck "(C₁-C₄)-Halogenalkyl" eine unter dem Ausdruck "(C₁-C₄)-Alkyl" genannte Alkygruppe, in der eines oder mehrere Wasserstoffatome durch die obengenannten Halogenatome, bevorzugt Chlor oder Fluor, ersetzt sind, wie beispielsweise die Trifluormethylgruppe, die 1-Fluorethylgruppe, die 2,2,2-Trifluorethylgruppe, die Chlormethyl-, Fluormethylgruppe, die Difluormethylgruppe oder die 1,1,2,2-Tetrafluorethylgruppe;

unter dem Ausdruck "(C₁-C₂)-Fluoralkyl" z.B. die 1-Fluorethyl-, 2-Fluorethyl-, 1,1-Difluorethyl- oder die 2,2,2-Trifluorethyl-Gruppe zu verstehen;

unter dem Ausdruck "Cycloalkyl" vorzugsweise (C₃-C₈)-Cycloalkyl;

unter dem Ausdruck "Cycloalkoxy" vorzugsweise (C₃-C₈)-Cycloalkoxy;

unter dem Ausdruck "Cycloalkylthio" vorzugsweise (C₃-C₈)-Cycloalkylthio;

unter dem Ausdruck "(C₃-C₅)-Cycloalkyl" die Cyclopropyl-, Cyclobutyl- oder Cyclopentylgruppe;

unter dem Ausdruck "(C₃-C₆)-Cycloalkyl" die oben unter "(C₃-C₅)-Cycloalkyl" genannte Reste, sowie der Cyclohexyl-Rest;

unter dem Ausdruck "(C₃-C₈)-Cycloalkyl" die oben unter "(C₃-C₆)-Cycloalkyl" genannten Reste, sowie der Cycloheptyl- oder Cyclooctyl-Rest;

unter dem Ausdruck "(C₃-C₅)-Halogencycloalkyl" eine der oben aufgeführten (C₃-C₅)-Cycloalkylreste, in denen eines oder mehrere, im Falle von Fluor gegebenenfalls auch alle Wasserstoffatome, durch Halogen, bevorzugt Fluor oder Chlor, ersetzt sind, wie beispielsweise die 2,2-Difluor- oder 2,2-Dichlorcyclopropan-Gruppe oder der Fluorcyclopentan-Rest;

unter dem Ausdruck "(C₂-C₄)-Alkenyl" z.B. die Vinyl-, Allyl-, 2-Methyl-2-propenyl- oder 2-Butenyl-Gruppe;

unter dem Ausdruck (C₂-C₈)-Alkenyl die vorstehend genannten Reste, sowie z.B. die 1-Pentenyl-, 2-Pentenyl-, 3-Pentenyl-, 4-Pentenyl- oder die 1-Octenyl-Gruppe

unter dem Ausdruck "(C₂-C₂₀)-Alkenyl" die vorstehend genannten Reste, sowie z.B. die 2-Decenyl- oder die 2-Eicosenyl-Gruppe;

unter dem Ausdruck "(C₂-C₄)-Halogenalkenyl" eine (C₂-C₄)-Alkenyl-Gruppe in der die Wasserstoffatome teilweise oder im Falle von Fluor auch vollständig durch Halogen, bevorzugt Fluor oder Chlor, ersetzt sind;

unter dem Ausdruck "(C₂-C₄)-Alkinyl" z.B. die Ethinyl-, Propargyl-, 2-Methyl-2-propin oder 2-Butinyl-Gruppe;

unter dem Ausdruck "(C₂-C₈)-Alkinyl" z.B. die vorstehend genannten Reste sowie z.B. die 1-Pentinyl, 2-Pentinyl-, 3-Pentinyl-, 4-Pentinyl- oder die 1-Octinyl-Gruppe,

unter dem Ausdruck "(C₂-C₂₀)-Alkinyl" die vorstehend genannten Reste, sowie z.B. die 1-Decinyl- oder die 2-Decinyl-Gruppe;

unter dem Ausdruck "(C₂-C₄)-Halogenalkinyl" eine (C₂-C₄)-Alkinylgruppe in der die Wasserstoffatome teilweise, im Falle von Fluor auch vollständig, durch Halogenatome, bevorzugt Fluor oder Chlor, ersetzt sind;

unter dem Ausdruck "(C₁-C₄)-Hydroxyalkyl" z.B. die Hydroxymethyl-, 1-Hydroxyethyl-, 2-Hydroxyethyl-, 1-Hydroxy-1-methyl-ethyl- oder die 1-Hydroxypropyl-Gruppe;

unter dem Ausdruck "(C₁-C₄)-Alkanoyl-(C₁-C₄)alkyl" z.B. eine Acetylmethyl-, Propionylmethyl-, 2-Acetylethyl- oder eine Butyrylmethyl-Gruppe;

unter dem Ausdruck "(C₁-C₄)-Alkanoyl" z.B. die Formyl-, Acetyl-, Propionyl-, 2-Methylpropionyl- oder Butyryl-Gruppe;

unter dem Ausdruck (C₁-C₈)-Alkanoyl die vorstehend genannte Reste, sowie z.B. die Valeroyl-, Pivaloyl, Hexanoyl-, Heptanoyl- oder Octanoyl-Gruppe;

unter dem Ausdruck "(C₁-C₁₂)-Alkanoyl" z.B. die vorgenannten Reste sowie beispielsweise die Nonanoyl-, Decanoyl- oder die Dodecanoyl-Gruppe;

unter dem Ausdruck "(C₂-C₄)-Halogenalkanoyl" eine (C₁-C₄)-Alkanoyl-Gruppe, in der die Wasserstoffatome teilweise, im Falle von Fluor auch vollständig, durch

Halogenatome, bevorzugt Fluor oder Chlor, ersetzt sind; unter dem Ausdruck "(C₂-C₁₂)-Halogenalkanoyl" eine (C₁-C₂₀)-Alkanoyl-Gruppe, in der die Wasserstoffatome teilweise, im Falle von Fluor auch vollständig, durch Halogenatome, bevorzugt Fluor oder Chlor, ersetzt sind; unter dem Ausdruck "Cyan-(C₁-C₄)-alkyl" eine Cyanalkyl-Gruppe, deren Kohlenwasserstoffrest die unter dem Ausdruck "(C₁-C₄)-Alkyl" angegebenen Bedeutungen hat; unter den Ausdrücken "(C₁-C₄)-Nitroalkyl" oder "(C₁-C₄)-Thiocyanatoalkyl" eine der oben genannten (C₁-C₄)-Alkylgruppen, die mit einer Nitro- oder einer Thiocyanato-Gruppe substituiert sind; unter dem Ausdruck "(C₁-C₄)-Alkoxy carbonyl" z.B. die Methoxycarbonyl-, Ethoxycarbonyl-, Propoxycarbonyl-, Butoxycarbonyl oder tert.-Butoxycarbonyl-Gruppe; unter dem Ausdruck "(C₁-C₈)-Alkoxy carbonyl" z.B. die vorstehend genannten Reste sowie z.B. die Pentyloxycarbonyl, Hexyloxycarbonyl- oder die Octyloxycarbonyl-Gruppe; unter dem Ausdruck "(C₁-C₁₂)-Alkoxy carbonyl" die vorstehend genannten Reste, sowie z.B. die Nonyloxycarbonyl-, 2-Methyloctyloxycarbonyl-, Decyloxycarbonyl- oder Dodecyloxycarbonyl-Gruppe; unter dem Ausdruck "(C₁-C₄)-Alkoxy carbonyl-(C₁-C₄)-alkyl" z.B. eine Methoxycarbonylmethyl, Ethoxycarbonylmethyl- oder Methoxycarbonylethyl-Gruppe; unter dem Ausdruck "(C₁-C₄)-Halogenalkoxycarbonyl" eine (C₁-C₄)-Alkoxy carbonyl-Gruppe, in der eines oder mehrere, im Falle von Fluor gegebenenfalls auch alle Wasserstoffatome, durch Halogen, bevorzugt Fluor oder Chlor, ersetzt sind; unter dem Ausdruck "(C₁-C₄)-Alkylthio" eine Alkylthiogruppe, deren Kohlenwasserstoffrest die unter dem Ausdruck "(C₁-C₄)-Alkyl" angegebene Bedeutung hat; unter dem Ausdruck "(C₁-C₈)-Alkylthio" eine Alkylthiogruppe, deren Alkylrest die unter dem Ausdruck "(C₁-C₈)-Alkyl" angegebene Bedeutung hat; unter dem Ausdruck "(C₁-C₄)-Halogenalkylthio" eine (C₁-C₄)-Alkylthio-Gruppe, in der

eines oder mehrere, im Falle von Fluor gegebenenfalls auch alle Wasserstoffatome des Kohlenwasserstoff-Teils durch Halogen, insbesondere Chlor oder Fluor ersetzt sind;

unter dem Ausdruck "(C₁-C₄)-Alkylsulfinyl" z.B. die Methyl-, Ethyl-, Propyl-, Isopropyl-, Butyl-, Isobutyl-, sek.-Butyl- oder tert.-Butylsulfinyl-Gruppe;

unter dem Ausdruck "(C₁-C₈)-Alkylsulfinyl" eine der vorstehend genannten Alkylsulfinyl-Gruppen, sowie z.B. die Pentylsulfinyl-, 2-Methylbutylsulfinyl-, Hexylsulfinyl- oder Octylsulfinyl-Gruppe;

unter dem Ausdruck "(C₁-C₄)-Alkylsulfonyl" z.B. die Methyl-, Ethyl-, Propyl-, Isopropyl-, Butyl-, Isobutyl-, sek.-Butyl- oder tert.-Butylsulfonyl-Gruppe;

unter den Ausdrücken "(C₁-C₄)-Halogenalkylsulfinyl" und "(C₁-C₄)-Halogenalkylsulfonyl" (C₁-C₄)-Alkylsulfinyl- und -sulfonyl-Reste mit den oben angegebenen Bedeutungen, bei denen eines oder mehrere, im Falle von Fluor gegebenenfalls auch alle, Wasserstoffatome des Kohlenwasserstoff-Teils durch Halogen, insbesondere Chlor oder Fluor, ersetzt sind;

unter den Ausdrücken "Fluormethylsulfinyl" und "Fluormethylsulfonyl" die Mono-, Di- und Trifluormethyl-sulfinyl- und -sulfonyl-Gruppe;

unter dem Ausdruck "(C₁-C₄)-Alkoxy" eine Alkoxygruppe, deren Kohlenwasserstoffrest die unter dem Ausdruck "(C₁-C₄)-Alkyl" angegebene Bedeutung hat;

unter dem Ausdruck "(C₁-C₈)-Alkoxy" eine Alkoxy-Gruppe, deren Kohlenwasserstoffrest die unter dem Ausdruck "(C₁-C₈)-Alkyl" angegebene Bedeutung hat;

unter dem Ausdruck "(C₁-C₈)-Alkylsulfonyl" eine der vorstehend genannten Alkylsulfonyl-Gruppen, sowie z.B. die Pentyl-, 2-Methylbutyl-, Hexyl-, Heptyl- oder Octylsulfonyl-Gruppe,

unter dem Ausdruck "(C₁-C₄)-Alkylamino" z.B. die Methylamino-, Ethylamino-, Propylamino-, Isopropylamino-, Butylamino-, Isobutylamino-, sek.-Butylamino- oder die tert.-Butylaminogruppe,

unter dem Ausdruck "(C₁-C₈)-Alkylamino" eine der vorstehend genannten (C₁-C₄)-Alkylamino-Gruppen, sowie z.B. die Petylamino-, Hexylamino-, Heptylamino- oder

Octylamino-Gruppe;

unter dem Ausdruck "(C₁-C₄)-Dialkylamino" z.B. die Dimethylamino-, Methyl-ethyl-amino-, Diethylamino-, Dipropylamino- oder die Dibutylamino-Gruppe, aber auch cyclische Systeme, wie z.B. die Pyrrolidino- oder Piperidino-Gruppe,

unter dem Ausdruck "(C₁-C₈)-Dialkylamino" eine der vorstehend genannten (C₁-C₄)-Dialkylamino-Gruppen, sowie z.B. die Dipentyl-, Dihexyl- oder die Dioctylamino-Gruppe;

unter dem Ausdruck "(C₁-C₄)-Halogenalkoxy" eine Halogenalkoxygruppe, deren Halogen-Kohlenwasserstoffrest die unter dem Ausdruck "(C₁-C₄)-Halogenalkyl" angegebene Bedeutung hat;

unter dem Ausdruck "(C₁-C₄)-Alkoxy-(C₁-C₄)-alkyl" beispielsweise eine 1-Methoxyethylgruppe, eine 2-Methoxyethylgruppe, eine 2-Ethoxyethylgruppe, eine Methoxymethyl- oder Ethoxymethylgruppe, eine 3-Methoxypropylgruppe oder eine 4-Butoxybutylgruppe;

unter den Ausdrücken "(C₁-C₄)-Halogenalkoxy-(C₁-C₄)-Alkyl, "(C₁-C₄)-Alkoxy-(C₁-C₄)-halogenalkyl" und "(C₁-C₄)-Halogenalkoxy-(C₁-C₄)-halogenalkyl" (C₁-C₄)-Alkoxy-(C₁-C₄)-alkyl-Reste mit den oben angegebenen Bedeutungen, bei denen eines oder mehrere, im Falle von Fluor gegebenenfalls auch alle, Wasserstoffatome der entsprechenden Kohlenwasserstoff-Anteile durch Halogen, bevorzugt Chlor oder Fluor, ersetzt sind;

unter dem Ausdruck "(C₁-C₄)-Alkylthio-(C₁-C₄)-alkyl" beispielsweise Methylthiomethyl, Ethylthiomethyl, Propylthiomethyl, 2-Methylthioethyl, 2-Ethylthioethyl oder 3-Methylthiopropyl;

unter dem Ausdruck "Aryl" ein isocyclischer aromatischer Rest mit vorzugsweise 6 bis 14, insbesondere 6 bis 12 C-Atomen, wie beispielsweise Phenyl, Naphthyl oder Biphenylyl, vorzugsweise Phényl;

unter dem Ausdruck "Heterocycl" vorzugsweise ein heteroaromatisches oder heteroaliphatisches Ringsystem, wobei unter "heteroaromatisches Ringsystem" vorzugsweise ein Arylrest, worin mindestens eine CH-Gruppe durch N ersetzt ist und/oder mindestens zwei benachbarte CH-Gruppen durch S, NH oder O ersetzt sind, zu verstehen ist, z.B. ein Rest von Thiophen, Furan, Pyrrol, Thiazol, Oxazol,

Imidazol, Isothiazol, Isoxazol, Pyrazol, 1,3,4-Oxadiazol, 1,3,4-Thiadiazol, 1,3,4-Triazol, 1,2,4-Oxadiazol, 1,2,4-Thiadiazol, 1,2,4-Triazol, 1,2,3-Triazol, 1,2,3,4-Tetrazol, Benzo[b]thiophen, Benzo[b]furan, Indol, Benzo[c]thiophen, Benzo[c]furan, Isoindol, Benzoxazol, Benzothiazol, Benzimidazol, Benzisoxazol, Benzisothiazol, Benzopyrazol, Benzothiadiazol, Benzotriazol, Dibenzofuran, Dibenzothiophen, Carbazol, Pyridin, Pyrazin, Pyrimidin, Pyridazin, 1,3,5-Triazin, 1,2,4-Triazin, 1,2,4,5-Triazin, Chinolin, Isochinolin, Chinoxalin, Chinazolin, Cinnolin, 1,8-Naphthyridin, 1,5-Naphthyridin, 1,6-Naphthyridin, 1,7-Naphthyridin, Phthalazin, Pyridopyrimidin, Purin, Pteridin oder 4H-Chinolizin; und unter dem Ausdruck "heteroaliphatisches Ringsystem" vorzugsweise ein (C_3 - C_8)-Cycloalkylrest, in dem mindestens eine Kohlenstoff-Einheit durch O, S oder eine Gruppe NR¹¹ ersetzt ist und R¹¹ Wasserstoff, (C_1 - C_4)-Alkyl, (C_1 - C_4)-Alkoxy oder Aryl bedeutet; unter dem Ausdruck "Arylthio" z.B. die Phenylthio- oder die 1- oder 2-Naphthylthio-Gruppe; unter dem Ausdruck "Aryloxy" z.B. die Phenoxy- oder 1- oder 2-Naphthyoxy-Gruppe; unter dem Ausdruck "Heterocyclxyoxy" oder "Heterocyclthio" einen der oben genannten heterocyclischen Reste, die über ein Sauerstoff- oder Schwefelatom verknüpft sind; unter dem Ausdruck "(C_3 - C_8)-Cycloalkoxy" oder "(C_3 - C_8)-Cycloalkylthio" eine der oben angeführten (C_3 - C_8)-Cycloalkyl-Reste, die über ein Sauerstoff- oder Schwefelatom verknüpft sind; unter dem Ausdruck "Aroyl" z.B. die Benzoyl-, Naphthoyl- oder die Biphenylcarbonyl-Gruppe; unter dem Ausdruck "Aryl-(C_1 - C_4)-alkanoyl" z.B. die Phenylacetyl-, 3-Phenylpropionyl-, 2-Phenylpropionyl-, 2-Methyl-2-phenyl-propionyl-, 4-Phenylbutyryl- oder die Naphthylacetyl-Gruppe; unter dem Ausdruck "(C_3 - C_8)-Cycloalkyl-(C_1 - C_4)-alkanoyl" z.B. die Cyclopropylcarbonyl-, Cyclobutylcarbonyl-, Cyclopentylcarbonyl-, Cyclohexylcarbonyl-, Cyclohexylacetyl- oder die Cyclohexylbutyryl-Gruppe;

unter dem Ausdruck "Heterocyclyl-(C₁-C₄)-alkanoyl" z.B. die Thenoyl-, Furoyl-, Nicotinoyl-, Thienylacetyl- oder die Pyridin-propionyl-Gruppe;

unter dem Ausdruck "(C₃-C₈)-Cycloalkoxycarbonyl" z.B. die Cyclobutyloxycarbonyl-, Cyclopentyloxycarbonyl-, Cyclohexyloxycarbonyl- oder die Cycloheptyloxycarbonyl-Gruppe;

unter dem Ausdruck "(C₃-C₈)-Cycloalkyl-(C₁-C₄)-alkoxycarbonyl" z.B. die Cyclopropylmethoxycarbonyl-, Cyclobutylmethoxycarbonyl-, Cyclopentyloxymethoxycarbonyl-, Cyclohexyloxymethoxycarbonyl-, 1-(Cyclohexyl)-ethoxycarbonyl- oder die 2-(Cyclohexyl)-ethoxycarbonyl-Gruppe;

unter dem Ausdruck "Aryl-(C₁-C₄)-alkoxycarbonyl" z.B. die Benzyloxycarbonyl-, 1-Naphthylmethoxycarbonyl-, 2-Naphthylmethoxycarbonyl-, 1-Phenyl-ethoxycarbonyl- oder die 2-Phenyl-ethoxycarbonyl-Gruppe; unter dem Ausdruck "Heterocyclyl-(C₁-C₄)-alkoxycarbonyl", z.B. die Thienylmethoxycarbonyl-, Furylmethoxycarbonyl-, Tetrahydrofurylmethoxycarbonyl- oder die Pyridylethoxycarbonyl-Gruppe;

unter dem Ausdruck "Aryloxycarbonyl" z.B. die Phenoxy carbonyl-, Naphthoxy carbonyl- oder die Biphenyloxycarbonyl-Gruppe;

unter dem Ausdruck "Heterocyclyloxycarbonyl" z.B. die Tetrahydropyran-4-oxycarbonyl-Gruppe;

unter dem Ausdruck "(C₁-C₂₀)-Alkanoyloxy" z.B. die Formyloxy-, Acetoxy, Propionyloxy-, Butyryloxy-, Pivaloyloxy-, Valeroyloxy- oder die Hexanoyloxy-Gruppe;

unter dem Ausdruck "(C₂-C₂₀)-Halogenalkanoyloxy" eine (C₂-C₂₀)-Alkanoyloxy-Gruppe, in der eines oder mehrere, im Falle von Fluor gegebenenfalls auch alle Wasserstoffatome des Kohlenwasserstoff-Teils durch Halogen, insbesondere Fluor oder Chlor, ersetzt sind;

unter dem Ausdruck "(C₃-C₈)-Cycloalkanoyloxy" z.B. die Cyclopropanoyloxy-, Cyclobutenoyloxy-, Cyclopentanoyloxy-, Cyclohexanoyloxy- oder die Cycloheptanoyloxy-Gruppe;

unter dem Ausdruck "(C₃-C₈)-Cycloalkyl-(C₁-C₄)-alkanoyloxy" z.B. die Cyclopropylcarbonyloxy-, Cyclopropylacetox-, Cyclobutylcarbonyloxy-, Cyclopentylcarbonyloxy, Cyclohexylcarbonyloxy, Cyclohexylacetox- oder die

4-Cyclohexyl-butyryloxy-Gruppe;

unter dem Ausdruck "Aroyloxy" z.B. die Benzoyloxy- oder die Naphthoyloxy-Gruppe;

unter dem Ausdruck "Aryl-(C₁-C₄)-alkanoyloxy" z.B. die Benzoyloxy-, Naphthoyloxy-, Biphenylicarbonyloxy-, Phenylacetoxo- oder die Phenylbutyryloxy-Gruppe;

unter dem Ausdruck "Heterocycl-(C₁-C₄)-alkanoyloxy" z.B. die

Thienylcarbonyloxy-, Thienylacetoxo-, Pyridylcarbonyloxy- oder die

Pyrimidinylcarbonyloxy-Gruppe;

unter dem Ausdruck "(C₁-C₂₀)-Alkylsulfonyloxy" z.B. die Methan-, Ethan-, Butan- oder Hexansulfonyloxy-Gruppe;

unter dem Ausdruck "Arylsulfonyloxy" z.B. die Phenylsulfonyloxy- oder die

Toluolsulfonyloxy-Gruppe;

unter dem Ausdruck "Halogenvinyl" eine Vinylgruppe, in der die Wasserstoffatome teilweise oder vollständig durch Halogen, bevorzugt Fluor oder Chlor, ersetzt sind;

unter dem Ausdruck "Fluorvinyl" eine Vinylgruppe, in der die Wasserstoffatome teilweise oder vollständig durch Fluor ersetzt sind.

Zu den Substituenten mit denen die verschiedenen aliphatischen, cycloaliphatischen aromatischen und heterocyclischen Ringsysteme versehen sein können, zählen z.B. Halogen, Nitro, Cyano, Di-(C₁-C₄)-alkylamino, (C₁-C₄)-Alkyl, (C₃-C₈)-Cycloalkyl, (C₁-C₄)-Trialkylsilyl, (C₁-C₄)-Alkoxy, (C₁-C₄)-Alkoxy-(C₁-C₄)-alkyl, (C₁-C₂)-Alkoxy-[CH₂CH₂O]_{0,1,2}-ethoxy, (C₁-C₄)-Alkylthio, (C₁-C₄)-Alkylsulfinyl, (C₁-C₄)-Alkylsulfonyl, Phenyl, Benzyl, Phenoxy, Halogenphenoxy, (C₁-C₄)-Alkylphenoxy, (C₁-C₄)-Alkoxyphenoxy, Phenylthio, Heterocycl, Heterocylthio oder Heterocyclxy, wobei in den Alkyresten und den davon abgeleiteten Resten eines oder mehrere Wasserstoffatome, im Falle von Fluor auch bis zur Maximalanzahl, durch Halogen, bevorzugt Chlor oder Fluor, ersetzt sein können, wobei für den Fall, daß diese Substituenten (C₁-C₄)-Alkyl bedeuten, diese auch cyclisch verknüpft sein können und in diesen kondensierten Ringsystemen, wie z.B. Indan-, Di-, Tetra- oder Dekahydronaphthyl- oder Benzocycloheptansystem, eine oder zwei aliphatische Kohlenstoff-Einheiten durch Heteroatom-Einheiten, wie Sauerstoff oder Schwefel, ersetzt sein können und an den aliphatischen Kohlenstoff-Atom-Einheiten ein oder

mehrere Wasserstoffatome, im Falle von Fluor auch bis zur Maximalanzahl, durch Halogen oder (C_1 - C_4)-Alkyl ersetzt sein können.

Weiterhin ist unter der Definition, daß "in den genannten Alkyl, Alkenyl- oder Alkinyl-Resten eine oder mehrere, vorzugsweise bis zu drei nicht benachbarte gesättigte Kohlenstoff-Einheiten durch eine Carbonyl-Gruppe oder durch Heteroatom-Einheiten, wie Sauerstoff, $S(O)_x$, mit $x = 0, 1$ oder 2 , NR^8 oder SiR^7R^8 , ersetzt sein können, wobei R^6 Wasserstoff, (C_1 - C_4)-Alkyl, (C_1 - C_4)-Alkoxy oder (C_1 - C_4)-Alkanoyl bedeutet und R^7 und R^8 (C_1 - C_4)-Alkyl, bevorzugt Methyl, bedeuten und worin darüber hinaus 3 bis 12 Atome dieser gegebenenfalls wie vorstehend modifizierten Kohlenwasserstoff-Reste einen Cyclus bilden können und diese Kohlenwasserstoff-Reste mit oder ohne die angegebenen Variationen, gegebenenfalls mit einem oder mehreren, vorzugsweise bis zu drei, im Falle von Fluor bis zur Maximalanzahl, an gleichen oder verschiedenen Resten aus der Reihe Halogen, Aryl, Aryloxy, Arylthio, Cycloalkoxy, Cycloalkylthio, Heterocycl, Heterocyclyoxy, Heterocyclthio, Alkanoyl, Cycloalkanoyl, Halogenalkanoyl, Aroyl, Arylalkanoyl, Cycloalkylalkanoyl, Heterocyclalkanoyl, Alkoxy carbonyl, Halogenalkoxycarbonyl, Cycloalkoxycarbonyl, Cycloalkylalkoxycarbonyl, Arylalkoxycarbonyl, Heterocyclalkoxycarbonyl, Aryloxy carbonyl, Heterocyclyoxycarbonyl, Alkanoyloxy, Halogenalkanoyloxy, Cycloalkanoyloxy, Cycloalkylalkanoyloxy, Aroyloxy, Arylalkanoyloxy, Heterocyclalkanoyloxy, Alkylsulfonyloxy, Arylsulfonyloxy, Hydroxy, Cyano, Thiocyano oder Nitro substituiert sein können, wobei die cycloaliphatischen, aromatischen oder heterocyclischen Ringsysteme unter den soeben genannten Substituenten unsubstituiert oder mit bis zu drei, im Falle von Fluor auch bis zur Maximalanzahl an gleichen oder verschiedenen Substituenten versehen sein können", z.B. zu verstehen:

Alkoxyalkyl-Reste, wie z.B. die Methoxymethyl-, Methoxyethyl oder Ethoxyethyl- Gruppe; oder

Alkoxy-alkoxy-alkyl-Reste, wie z.B. die Methoxy- oder die Ethoxy-ethoxyethyl-Gruppe; oder

Alkylthioalkyl-Reste, wie z.B. die Methyl- oder die Ethylthioethyl-Gruppe; oder

Alkylsulfinyl-alkyl-Reste, wie z.B. die Methyl- oder Ethylsulfinylethyl-Gruppe; oder

Alkylsulfonyl-alkyl-Reste, wie z.B. die Methyl- oder Ethylsulfonylethyl-Gruppe; oder

Alkyl-dialkylsilyl-alkyl-, vorzugsweise Alkyl-dimethylsilyl-alkyl-Reste, wie z.B. die

Trimethylsilylmethyl- oder die Trimethylsilylethyl-Gruppe; oder

Trialkylsilyl-, vorzugsweise Alkyldimethylsilyl-Reste, wie z.B. die Trimethylsilyl-,

Ethyldimethylsilyl-, tert.-Butyldimethylsilyl- oder die Octyldimethylsilyl-Gruppe; oder

Cycloalkyldialkylsilyl-, vorzugsweise Cycloalkyldimethylsilyl-Reste, wie z.B. die

Cyclohexyldimethylsilyl-Gruppe; oder

Aryldialkylsilyl-, vorzugsweise Aryldimethylsilyl-Reste, wie z.B. die

Phenyldimethylsilyl-Gruppe; oder

Arylalkyldialkylsilyl-, vorzugsweise Arylalkyldimethylsilyl-Reste, wie z.B. die

Benzylidimethylsilyl oder die Phenylethylidimethylsilyl-Gruppe; oder

Alkanoylalkyl-Reste, wie z.B. die Acetyl methyl- oder die Pivaloylmethyl-Gruppe;

oder Cycloalkanoylalkyl-Reste, wie z.B. die Cyclopropylcarbonylmethyl- oder die

Cyclohexylcarbonylmethyl-Gruppe; oder

Halogenalkanoylalkyl-Reste, wie z.B. die Trifluor- oder Trichloracetyl methyl-Gruppe;

oder

Aroylalkyl-Reste, wie z.B. die Benzoyl-, oder Naphthoylalkyl-Reste, wie z.B. die

Phenylacetyl methyl-Gruppe; oder

Heterocyclcarbonylalkyl-Reste, wie z.B. die Thienyl- oder Pyridylacetyl methyl-

Gruppe; oder

Aryl-alkyl-Reste, wie z.B. die Benzyl-, die 2-Phenylethyl-, die 1-Phenylethyl-, die

1-Methyl-1-phenylethylgruppe, die 3-Phenylpropyl-, die 4-Phenylbutylgruppe, die

2-Methyl-2-phenyl-ethylgruppe oder die 1-Methyl- oder 2-Methyl-naphthylgruppe;

oder

Heterocyclalkyl-Reste, wie z.B. die Thienylmethyl-, Pyridylmethyl-, Furfuryl-,

Tetrahydrofurfuryl-, Tetrahydropyranylmethyl- oder die 1,3-Dioxolan-2-methyl-

Gruppe; oder

Aryloxyalkyl-Reste, wie z.B. die Phenoxyethyl- oder Naphthoxymethyl-Gruppe; oder

Cycloalkylreste, monocyclisch, wie z.B. der Cyclopropyl-, Cyclobutyl-, Cyclopentyl-, Cyclohexyl-, Cycloheptyl- oder Cyclooctyl-Rest, bicyclisch, wie z.B. der Norbornylrest oder der Bicyclo[2,2,2]octyl-Rest, oder kondensiert, wie der Decahydronaphthyl-Rest;

Alkyl-cycloalkyl-Reste, wie z.B. die 4-Methyl- oder die 4-tert.-Butylcyclohexyl-Gruppe oder die 1-Methyl-cyclopropyl-, cyclobutyl-, cyclopentyl- oder -cyclohexyl-Gruppe;

Cycloalkyl-alkyl-Reste, wie z.B. die Cyclohexylmethyl- oder -ethyl-Gruppe; Cycloalkylen-Reste, monocyclisch, wie z.B. der Cyclopentenyl-, Cyclohexenyl-, Cycloheptenyl oder Cyclooctenyl-Rest, bicyclisch, wie z.B. der Norbornenyl- oder der Bicyclo[2,2,2]-octenyl-Rest, oder kondensiert, wie die verschiedenen Dihydro- oder Tetrahydronaphthyl-Reste;

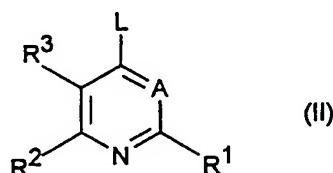
Cycloalkylen-alkyl-Reste, wie z.B. der 1-Cyclohexenyl-methyl oder -ethyl-Rest; oder auch Haloalkyl-Derivate der entsprechenden Gruppen, wie beispielsweise Haloalkyl-, Haloalkoxyalkyl-, Alkoxy-haloalkyl-, Haloalkyl-cycloalkyl- oder Halocycloalkyl-Reste.

Die oben abgegebene Erläuterung gilt entsprechend für Homologe bzw. deren abgeleitete Reste.

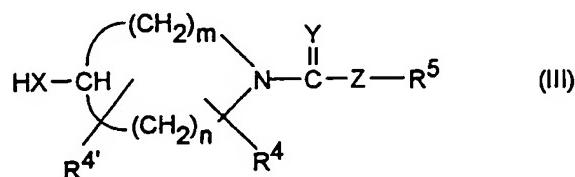
Die vorliegende Erfindung betrifft die Verbindungen der Formel (I) in Form der freien Base oder eines Säureadditionssalzes. Säuren, die zur Salzbildung herangezogen werden können, sind anorganische Säuren, wie Salzsäure, Bromwasserstoffsäure, Salpetersäure, Schwefelsäure, Phosphorsäure, oder organische Säuren, wie Ameisensäure, Essigsäure, Propionsäure, Malonsäure, Oxalsäure, Fumarsäure, Adipinsäure, Stearinsäure, Ölsäure, Methansulfonsäure, Benzolsulfonsäure oder Toluolsulfonsäure.

Die Verbindungen der Formel (I) weisen zum Teil ein oder mehrere asymmetrische Kohlenstoffatome oder Stereoisomere an Doppelbindungen auf. Es können daher Enantiomere oder Diastereomere auftreten. Die Erfindung umfaßt sowohl die reinen Isomeren als auch deren Gemische. Die Gemische von Diasteromeren können nach gebräuchlichen Methoden, z.B. durch selektive Kristallisation aus geeigneten Lösungsmitteln oder durch Chromatographie in die Komponenten aufgetrennt werden. Racemate können nach üblichen Methoden in die Enantiomeren aufgetrennt werden, so z.B. durch Salzbildung mit einer chiralen enantiomerenreinen Säure, Trennung der diastereomeren Salze und Freisetzung der reinen Enantiomeren mittels einer Base.

Die Erfindung betrifft weiterhin ein Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I), das dadurch gekennzeichnet ist, daß man eine Verbindung der Formel (II),



worin A, R¹, R² und R³ die unter Formel I angegebenen Bedeutungen haben und L eine Abgangsgruppe, beispielsweise Halogen, Alkylthio, Alkansulfonyloxy oder Arylsulfonyloxy, Alkylsulfonyl oder Arylsulfonyl bedeutet, mit einem Nucleophil der Formel (III),



worin X, Y, Z, m, n, R⁴, R^{4'} und R⁵ die oben unter Formel I angegebenen

Bedeutungen haben, umsetzt und in den so oder auf andere Weise erhaltenen Verbindungen der Formel (I), gegebenenfalls das Pyridin- oder Pyrimidin-System oder die Piperidin-Seitenkette weiter derivatisiert und die so erhaltenen Verbindungen gegebenenfalls in ihre Salze überführt.

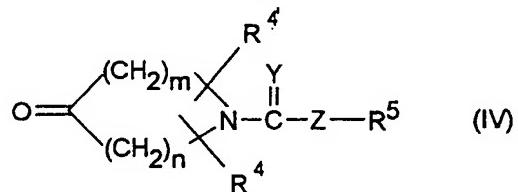
Die oben beschriebene Substitutionsreaktion ist im Prinzip bekannt. Die Abgangsgruppe L ist in weiten Grenzen variierbar und kann beispielsweise ein Halogenatom, wie Fluor, Chlor, Brom oder Iod, bedeuten oder Alkylthio, wie Methyl- oder Ethylthio, oder Alkansulfonyloxy, wie Methan-, Trifluormethan- oder Ethansulfonyloxy, oder Arylsulfonyloxy, wie Benzolsulfonyloxy oder Toluolsulfonyloxy, oder Alkylsulfonyl, wie Methyl- oder Ethylsulfonyl, oder Arylsulfonyl, wie Phenyl- oder Toluolsulfonyl.

Die vorgenannte Reaktion wird in einem Temperaturbereich von 20 bis 150°C, zweckmäßig in Anwesenheit einer Base und gegebenenfalls in einem inerten organischen Lösungsmittel, wie N,N-Dimethylformamid, N,N-Dimethylacetamid, Dimethylsulfoxid, N-Methylpyrrolidin-2-on, Dioxan, Tetrahydrofuran, 4-Methyl-2-pentanon, Methanol, Ethanol, Butanol, Ethylenglykol, Ethylenglycoldimethylether, Toluol, Chlorbenzol oder Xylool, durchgeführt. Es können auch Gemische der genannten Lösungsmittel verwendet werden.

Geeignete Basen für den Fall, daß X Sauerstoff bedeutet, sind beispielsweise Alkali- oder Erdalkalimetallcarbonate, -hydrogencarbonate, -amide oder -hydride, wie Natriumcarbonat, Natriumhydrogencarbonat, Kaliumcarbonat, Natriumamid oder Natriumhydrid, für den Fall, daß X NH bedeutet, sind dies beispielsweise Alkali- oder Erdalkalimetallcarbonate, -hydrogencarbonate, -hydroxide, -amide oder -hydride, wie Natriumcarbonat, Natriumhydrogencarbonat, Kaliumcarbonat, Natriumhydroxid, Natriumamid oder Natriumhydrid, oder organische Basen, wie Triethylamin oder Pyridin. Auch ein zweites Äquivalent eines Amins der Formel (III) kann als Hilfsbase eingesetzt werden.

Die als Ausgangsprodukte benötigten Verbindungen der Formel (II) sind größtenteils literaturbekannt oder können analog bekannten Methoden hergestellt werden (vgl. z.B. EP-A 0 370 391, EP-A 0 470 600, DE-A-43 31 179, DE-A-44 04 702).

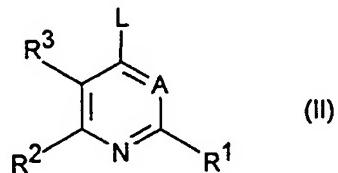
Zur Herstellung der Nucleophile der Formel (III) geht man vorzugsweise von geeignet substituierten Verbindungen der Formel (IV) aus



und wandelt diese durch reduktive Aminierung (H_2 , NH_3 , Metallkatalysator oder Ammoniumacetat/Natriumcyanoborhydrid oder Leuckart-Wallach-Reduktion) in die entsprechenden Amine oder durch Reduktion mit einem komplexen Metallhydrid in die entsprechenden Alkohole um.

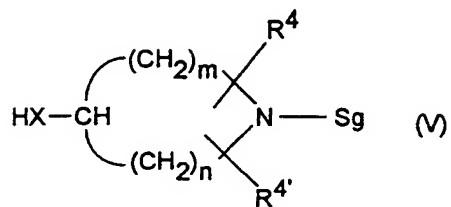
Die Ausgangsverbindungen der Formel (IV) sind teilweise bekannt oder können analog bekannten Verfahren hergestellt werden.

Die Erfindung betrifft weiterhin ein Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I), das dadurch gekennzeichnet ist, daß man eine Verbindung der Formel (II),



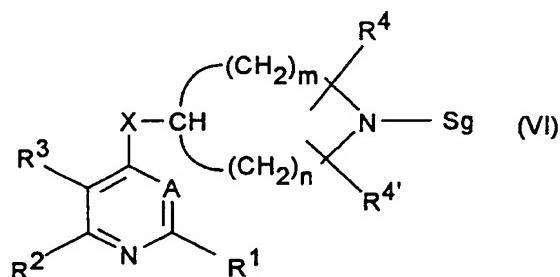
worin A, R^1 , R^2 und R^3 die unter Formel (I) angegebenen Bedeutungen haben und L eine Abgangsgruppe, beispielsweise Halogen, Alkylthio, Alkansulfonyloxy oder

Arylsulfonyloxy, Alkylsulfonyl oder Arylsulfonyl, bedeutet, mit einem Nucleophil der Formel (V)

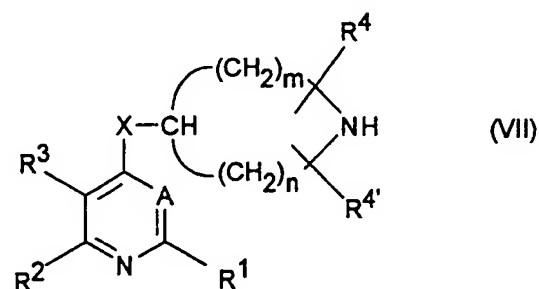


umsetzt,

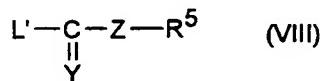
worin X, R⁴, R^{4'}, m und n die unter Formel (I) angegebenen Bedeutungen haben und Sg eine Schutzgruppe bedeutet,
in der so erhaltenen Verbindungen der Formel (VI)



worin A, R¹, R², R³, X, m, n, R⁴ und R^{4'} die unter Formel (I) angegebenen Bedeutungen haben und Sg eine Schutzgruppe bedeutet, die Schutzgruppe Sg abspaltet und die so erhaltene Verbindung der Formel (VII),



worin R¹, R², R³, A, X, m, n, R⁴ und R⁶ die oben zur Formel (I) angegebenen Bedeutungen haben, mit einer Verbindung der Formel (VIII) umgesetzt,



worin Y, Z und R⁵ die zu Formel (I) angegebenen Bedeutungen hat und L' eine Abgangsgruppe, bevorzugt Fluor, Chlor oder Brom, bedeutet und in den so oder auf andere Weise erhaltenen Verbindungen der Formel (I) gegebenenfalls das Pyridin- oder Pyrimidin-System oder die Piperidin-Seitenkette weiter derivatisiert.

Geeignete Schutzgruppen Sg zu Formel VI sind beispielsweise die Trifluoracetyl-, tert.-Butoxycarbonyl-, Benzyloxycarbonyl-, Benzyl-, Methoxybenzyl-, Dimethoxybenzyl-, Trityl- oder die 9-Phenylfluorenyl-Gruppe, die jeweils unter basischen, sauren, hydrogenolytischen oder oxidativen Bedingungen abgespalten werden können (vgl. z.B. P. J. Kocienski, Protecting Groups, Georg Thieme Verlag, Stuttgart 1994).

Die Umsetzung der Verbindungen der Formel (II) mit den Verbindungen der Formel (V) zu den Verbindungen der Formel (VI) erfolgt völlig analog der Umsetzung der Verbindungen der Formel (II) mit den Verbindungen der Formel (III).

Die Abspaltung der Schutzgruppe Sg von den Verbindungen der Formel (VI) erfolgt z.B. unter den in der Literatur zu den einzelnen Schutzgruppen angegebenen Methoden (vgl. z.B. P.J. Kocienski, Protecting Groups, Georg Thieme Verlag, Stuttgart 1994). So erfolgt die Abspaltung einer tert.-Butoxycarbonyl-Schutzgruppe z.B. durch Behandeln der Verbindung der Formel (VI) mit Säure in einem inertem Lösungsmittel, wie beispielsweise Dichlormethan oder Toluol.

Die Umsetzung der Verbindungen der Formel (VII) mit den Verbindungen der Formel VIII zu den Endprodukten der Formel (I) erfolgt zweckmäßig in Gegenwart

einer Base, wie z.B. Triethylamin oder Pyridin oder von anorganischen Säurebindern, wie z.B. Alkali- oder Erdalkali-carbonaten, oder -hydrogencarbonaten, wie z.B. Natrium-, Kalium- oder Calciumcarbonat oder Natrium- oder Kaliumhydrogencarbonat, in einem inerten Lösemittel, wie z.B. Dichlormethan, Trichlormethan, Tetrahydrofuran, Benzol, Toluol oder Pyridin.

Die Verbindungen der Formel (V) und der Formel (VIII) können, soweit sie nicht schon bekannt sind, analog bekannten Verfahren hergestellt werden.

Die Zwischenprodukte der Formel (VII) sind neu und sind ebenfalls Teil der Erfindung.

Kollektionen aus Verbindungen der Formel (I), die nach oben genannten Schema synthetisiert werden können, können auch in parallelisierter Weise hergestellt werden, wobei dies in manueller, teilweise automatisierter oder vollständig automatisierter Weise geschehen kann. Dabei ist es beispielsweise möglich, die Reaktionsdurchführung, die Aufarbeitung oder die Reinigung der Produkte bzw. Zwischenstufen zu automatisieren. Insgesamt wird hierunter eine Vorgehensweise verstanden, wie sie beispielsweise durch S.H. DeWitt in "Annual Reports in Combinatorial Chemistry and Molecular Diversity: Automated synthesis", Band 1, Verlag Escom 1997, Seite 69 bis 77 beschrieben ist.

Zur parallelisierten Reaktionsdurchführung und Aufarbeitung können eine Reihe von im Handel erhältlichen Geräten verwendet werden, wie sie beispielsweise von den Firmen Stem Corporation, Woodrolfe road, Tollesbury, Essex, CM9 8SE, England oder H+P Labortechnik GmbH, Bruckmannring 28, 85764 Oberschleißheim, Deutschland angeboten werden. Für die parallelisierte Aufreinigung von Verbindungen der allgemeinen Formel (I) beziehungsweise von bei der Herstellung anfallenden Zwischenprodukten stehen unter anderem Chromatographieapparaturen zur Verfügung, beispielsweise der Firma ISCO, Inc., 4700 Superior Street, Lincoln, NE 68504, USA.

Die aufgeführten Apparaturen führen zu einer modularen Vorgehensweise, bei der die einzelnen Arbeitsschritte automatisiert sind, zwischen den Arbeitsschritten jedoch manuelle Operationen durchgeführt werden müssen. Dies kann durch den Einsatz von teilweise oder vollständige integrierten Automationssystemen umgangen werden, bei denen die jeweiligen Automationsmodule beispielsweise durch Roboter bedient werden. Derartige Automationssysteme können zum Beispiel von der Firma Zymark Corporation, Zymark Center, Hopkinton, MA 01748, USA bezogen werden.

Neben dem hier beschriebenen kann die Herstellung von Verbindungen der allgemeinen Formel (I) vollständig oder partiell durch Festphasen unterstützte Methoden erfolgen. Zu diesem Zweck werden einzelne Zwischenstufen oder alle Zwischenstufen der Synthese oder einer für die entsprechende Vorgehensweise angepaßten Synthese an ein Syntheseharz gebunden. Festphasen unterstützte Synthesemethoden sind in der Fachliteratur hinreichend beschrieben, z.B. Barry A. Bunin in "The Combinatorial Index", Verlag Academic Press, 1998. Die Verwendung von Festphasen unterstützten Synthesemethoden erlaubt eine Reihe von literaturbekannten Protokollen, die wiederum manuell oder automatisierten ausgeführt werden können. Zum Beispiel kann die "Teebeutelmethode" (Houghten, US 4,631,211; Houghten et al., Proc. Natl. Acad. Sci, 1985, 82, 5131-5135) mit Produkten der Firma IRORI, 11149 North Torrey Pines Road, La Jolla, CA 92037, USA teilweise automatisiert werden. Die Automatisierung von Festphasen unterstützten Parallelsynthesen gelingt beispielsweise durch Apparaturen der Firmen Argonaut Technologies, Inc., 887 Industrial Road, San Carlos, CA 94070, USA oder MultiSynTech GmbH, Wullener Feld 4, 58454 Witten, Deutschland.

Die Herstellung gemäß der hier beschriebenen Verfahren liefert Verbindungen der Formel (I) in Form von Substanzkollektionen, die Bibliotheken genannt werden. Gegenstand der vorliegenden Erfindung sind auch Bibliotheken, die mindestens zwei Verbindungen der Formel (I) enthalten.

Die Wirkstoffe der Formel (I) eignen sich bei guter Pflanzenverträglichkeit und günstiger Warmblütentoxizität zur Bekämpfung von tierischen Schädlingen, insbesondere Insekten, Spinnentieren, Helminthen und Mollusken, ganz besonders bevorzugt zur Bekämpfung von Insekten und Spinnentieren, die in der Landwirtschaft, bei der Tierzucht, in Forsten, im Vorrats- und Materialschutz sowie auf dem Hygienesektor vorkommen. Sie sind gegen normal sensible und resistente Arten sowie alle oder einzelne Entwicklungsstadien wirksam. Zu den oben erwähnten Schädlingen gehören:

Aus der Ordnung der Acarina z.B. *Acarus siro*, *Argas spp.*, *Ornithodoros spp.*, *Dermanyssus gallinae*, *Eriophyes ribis*, *Phyllocoptuta oleivora*, *Boophilus spp.*, *Rhipicephalus spp.*, *Amblyomma spp.*, *Hyalomma spp.*, *Ixodes spp.*, *Psoroptes spp.*, *Chorioptes spp.*, *Sarcoptes spp.*, *Tarsonemus spp.*, *Bryobia praetiosa*, *Panonychus spp.*, *Tetranychus spp.*, *Eotetranychus spp.*, *Oligonychus spp.*, *Eutetranychus spp.*

Aus der Ordnung der Isopoda z.B. *Oniscus aselus*, *Armadium vulgare*, *Porcellio scaber*.

Aus der Ordnung der Diplopoda z.B. *Blaniulus guttulatus*.

Aus der Ordnung der Chilopoda z.B. *Geophilus carpophagus*, *Scutigera spp.*

Aus der Ordnung der Symphyta z.B. *Scutigerella immaculata*.

Aus der Ordnung der Thysanura z.B. *Lepisma saccharina*.

Aus der Ordnung der Collembola z.B. *Onychiurus armatus*.

Aus der Ordnung der Orthoptera z.B. *Blatta orientalis*, *Periplaneta americana*, *Leucophaea madera*, *Blattella germanica*, *Acheta domesticus*, *Gryllotalpa spp.*, *Locusta migratoria migratorioides*, *Melanoplus differentialis*, *Schistocerca gregaria*.

Aus der Ordnung des Isoptera z.B. *Reticulitermes spp.*

Aus der Ordnung der Anoplura z.B. *Phylloxera vastatrix*, *Pemphigus spp.*, *Pediculus humanus corporis*, *Haematopinus spp.*, *Linognathus spp.*

Aus der Ordnung der Mallophaga z.B. *Trichodectes pp.*, *Damalinea spp.*

Aus der Ordnung der Thysanoptera z.B. *Hercinothrips femoralis*, *Thrips tabaci*.

Aus der Ordnung der Heteroptera z.B. *Eurygaster spp.*, *Dysdercus intermedius*, *Piesma quadrata*, *Cimex lectularius*, *Rhodnius prolixus*, *Triatoma spp.*

Aus der Ordnung der Homoptera z.B. *Aleurodes brassicae*, *Bemisia tabaci*,

Trialeurodes vaporariorum, *Aphis gossypii*, *Brevicoryne brassicae*, *Cryptomyzus ribis*, *Doralis fabae*, *Doralis pomi*, *Eriosoma lanigerum*, *Hyalopterus arundinis*, *Macrosiphum avenae*, *Myzus spp.*, *Phorodon humuli*, *Rhopalosiphum padi*, *Empoasca spp.*, *Euscelus bilobatus*, *Nephrotettix cincticeps*, *Lecanium corni*, *Saissetia oleae*, *Laodelphax striatellus*, *Nilaparvata lugens*, *Aonidiella aurantii*, *Aspidiotus hederae*, *Pseudococcus spp.*, *Psylla spp..*

Aus der Ordnung der Lepidoptera z.B. *Pectinophora gossypiella*, *Bupalus piniarius*, *Cheimatobia brumata*, *Lithocolletis blancardella*, *Hyponomeuta padella*, *Plutella maculipennis*, *Malacosoma neustria*, *Euproctis chrysorrhoea*, *Lymantria spp.*, *Bucculatrix thurberiella*, *Phyllocoptis citrella*, *Agrotis spp.*, *Euxoa spp.*, *Feltia spp.*, *Earias insulana*, *Heliothis spp.*, *Laphygma exigua*, *Mamestra brassicae*, *Panolis flammea*, *Prodenia litura*, *Spodoptera spp.*, *Trichoplusia ni*, *Carpocapsa pomonella*, *Pieris spp.*, *Chilo spp.*, *Pyrausta nubilalis*, *Ephestia kuehniella*, *Galleria mellonella*, *Cacoecia podana*, *Capua reticulana*, *Choristoneura fumiferana*, *Clytia ambiguella*, *Homona magnanima*, *Tortrix viridana*.

Aus der Ordnung der Coleoptera z.B. *Anobium punctatum*, *Rhizopertha dominica*, *Bruchidius obtectus*, *Acanthoscelides obtectus*, *Hylotrupes bajulus*, *Agelastica alni*, *Leptinotarsa decemlineata*, *Phaedon cochleariae*, *Diabrotica spp.*, *Psylloides chrysocephala*, *Epilachna varivestis*, *Atomaria spp.*, *Oryzaephilus surinamensis*, *Anthonomus spp.*, *Sitophilus spp.*, *Otiorrhynchus sulcatus*, *Cosmopolites sordidus*, *Ceuthorrhynchus assimilis*, *Hypera postica*, *Dermestes spp.*, *Trogoderma*, *Anthrenus spp.*, *Attagenus spp.*, *Lyctus spp.*, *Meligethes aeneus*, *Ptinus spp.*, *Niptus hololeucus*, *Gibbum psylloides*, *Tribolium spp.*, *Tenebrio molitor*, *Agriotes spp.*, *Conoderus spp.*, *Melolontha melolontha*, *Amphimallon solstitialis*, *Costelytra zealandica*.

Aus der Ordnung der Hymenoptera z.B. *Diprion spp.*, *Hoplocampa spp.*, *Lasius spp.*, *Monomorium pharaonis*, *Vespa spp..*

Aus der Ordnung der Diptera z.B. *Aedes spp.*, *Anopheles spp.*, *Culex spp.*, *Drosophila melanogaster*, *Musca spp.*, *Fannia spp.*, *Calliphora erythrocephala*, *Lucilia spp.*, *Chrysomyia spp.*, *Cuterebra spp.*, *Gastrophilus spp.*, *Hypobosca spp.*,

Stomoxys spp., Oestrus spp., Hypoderma spp., Tabanus spp., Tannia spp., Bibio hortulanus, Oscinella frit, Phorbia spp., Pegomyia hyoscyami, Ceratitis capitata, Dacus oleae, Tipula paludosa.

Aus der Ordnung der Siphonaptera z.B. Xenopsylla cheopsis, Ceratophyllus spp..

Aus der Ordnung der Arachnida z.B. Scorpio maurus, Latrodectus mactans.

Aus der Klasse der Helminthen z.B. Haemonchus, Trichostrongulus, Ostertagia, Cooperia, Chabertia, Strongyloides, Oesophagostomum, Hyostrongulus, Ancylostoma, Ascaris und Heterakis sowie Fasciola.

Aus der Klasse der Gastropoda z.B. Deroceras spp., Arion spp., Lymnaea spp.,

Galba spp., Succinea spp., Biomphalaria spp., Bulinus spp., Oncomelania spp..

Aus der Klasse der Bivalva z.B. Dreissena spp..

Zu den pflanzenparasitären Nematoden, die erfindungsgemäß bekämpft werden können, gehören beispielsweise die wurzelparasitären Bodennematoden wie z.B. solche der Gattungen Meloidogyne (Wurzelgallennematoden, wie Meloidogyne incognita, Meloidogyne hapla und Meloidogyne javanica), Heterodera und Globodera (zystenbildende Nematoden, wie Globodera rostochiensis, Globodera pallida, Heterodera trifolii) sowie der Gattungen Radopholus wie Radopholus similis, Pratylenchus wie Pratylenchus neglectus, Pratylenchus penetrans und Pratylenchus curvitatus;

Tylenchulus wie Tylenchulus semipenetrans, Tylenchorhynchus, wie Tylenchorhynchus dubius und Tylenchorhynchus claytoni, Rotylenchus wie Rotylenchus robustus, Heliocotylenchus wie Heliocotylenchus multicinctus, Belonoaimus wie Belonoaimus longicaudatus, Longidorus wie Longidorus elongatus, Trichodorus wie Trichodorus primitivus und Xiphinema wie Xiphinema index.

Ferner lassen sich mit den erfindungsgemäßen Verbindungen die Nematodengattungen Ditylenchus (Stengelparasiten, wie Ditylenchus dipsaci und Ditylenchus destructor), Aphelenchoides (Blattnematoden, wie Aphelenchoides

ritzemabosi) und Anguina (Blütennematoden, wie Anguina tritici) bekämpfen.

Die Erfindung betrifft auch Mittel, insbesondere insektizide und akarizide Mittel, die die Verbindungen der Formel (I) neben geeigneten Formulierungshilfsmitteln enthalten.

Die erfindungsgemäßen Mittel enthalten die Wirkstoffe der Formel (I) im allgemeinen zu 1 bis 95 Gew.-%.

Sie können auf verschiedene Art formuliert werden, je nachdem wie es durch die biologischen und/oder chemisch-physikalischen Parameter vorgegeben ist. Als Formulierungsmöglichkeiten kommen vorzugsweise in Frage:

Spritzpulver (WP), emulgierbare Konzentrate (EC), wäßrige Lösungen (SL), Emulsionen, versprühbare Lösungen, Dispersionen auf Öl- oder Wasserbasis (SC), Suspoemulsionen (SE), Stäubemittel (DP), Beizmittel, Granulate in Form von Mikro-, Sprüh-, Aufzugs- und Adsorptionsgranulaten, wasserdispersierbare Granulate (WG), ULV-Formulierungen, Mikrokapseln, Wachse oder Köder.

Diese einzelnen Formulierungstypen sind im Prinzip bekannt und beispielsweise beschrieben in:

Winnacker-Küchler, "Chemische Technologie", Band 7, C. Hauser Verlag München, 4. Aufl. 1986; van Falkenberg, "Pesticides Formulations", Marcel Dekker N.Y., 2nd Ed. 1972-73; K. Martens, "Spray Drying Handbook", 3rd Ed. 1979, G. Goodwin Ltd. London.

Die notwendigen Formulierungshilfsmittel, wie Inertmaterialien, Tenside, Lösungsmittel und weitere Zusatzstoffe, sind ebenfalls bekannt und beispielsweise beschrieben in:

Watkins, "Handbook of Insecticide Dust Diluents and Carriers", 2nd Ed., Darland Books, Caldwell N.J.; H. v. Olphen, "Introduction to Clay Colloid Chemistry", 2nd

Ed., J. Wiley & Sons, N.Y.; Marsden, "Solvents Guide", 2nd Ed., Interscience, N.Y. 1950; McCutcheon's, "Detergents and Emulsifiers Annual", MC Publ. Corp., Ridgewood N.J.; Sisley and Wood, "Encyclopedia of Surface Active Agents", Chem. Publ. Co. Inc., N.Y. 1964; Schönfeldt, "Grenzflächenaktive Äthylenoxidaddukte", Wiss. Verlagsgesell., Stuttgart 1967; Winnacker-Küchler, "Chemische Technologie", Band 7, C. Hauser Verlag München, 4. Aufl. 1986.

Auf der Basis dieser Formulierungen lassen sich auch Kombinationen mit anderen pestizid wirksamen Stoffen, Düngemitteln und/oder Wachstumsregulatoren herstellen, z.B. in Form einer Fertigformulierung oder als Tankmix. Spritzpulver sind in Wasser gleichmäßig dispergierbare Präparate, die neben dem Wirkstoff außer einem Verdünnungs- oder Inertstoff noch Netzmittel, z.B. polyoxethylierte Alkylphenole, polyoxethylierte Fettalkohole, Alkyl- oder Alkylphenol-sulfonate, und Dispergiermittel, z.B. ligninsulfonsaures Natrium, 2,2'-dinaphthylmethan-6,6'-disulfonsaures Natrium, enthalten.

Emulgierbare Konzentrate werden durch Auflösen des Wirkstoffes in einem organischen Lösungsmittel, z.B. Butanol, Cyclohexanon, Dimethylformamid, Xylool oder auch höhersiedenden Aromaten oder Kohlenwasserstoffen unter Zusatz von einem oder mehreren Emulgatoren hergestellt. Als Emulgatoren können beispielsweise verwendet werden: Alkylarylsulfonsaure Calcium-Salze, wie Cadodecylbenzol-sulfonat, oder nichtionische Emulgatoren, wie Fettsäurepolyglykolester, Alkylarylpolyglykolether, Fettalkoholpolyglykolether, Propylenoxid-Ethylenoxid-Kondensationsprodukte, Alkylpolyether, Sorbitanfettsäureester, Polyoxyethylensorbitan-Fettsäureester oder Polyoxyethylensorbitester.

Stäubemittel erhält man durch Vermahlen des Wirkstoffes mit fein verteilten festen Stoffen, z.B. Talkum, natürlichen Tonen, wie Kaolin, Bentonit, Pyrophillit, oder Diatomeenerde. Granulate können entweder durch Verdüsen des Wirkstoffes auf adsorptionsfähiges, granulierte Inertmaterial hergestellt werden oder durch Aufbringen von Wirkstoffkonzentraten mittels Klebemitteln, z.B. Polyvinylalkohol,

polyacrylsaurem Natrium oder auch Mineralölen, auf die Oberfläche von Trägerstoffen, wie Sand, Kaolinite, oder von granuliertem Inertmaterial. Auch können geeignete Wirkstoffe in der für die Herstellung von Düngemittelgranulaten üblichen Weise - gewünschtenfalls in Mischung mit Düngemitteln - granuliert werden.

In Spritzpulvern beträgt die Wirkstoffkonzentration z.B. etwa 10 bis 90 Gew.-% der Rest zu 100 Gew.-% besteht aus üblichen Formulierungsbestandteilen. Bei emulgierbaren Konzentraten kann die Wirkstoffkonzentration etwa 5 bis 80 Gew.-% betragen. Staubförmige Formulierungen enthalten meistens 5 bis 20 Gew.-% an Wirkstoff, versprühbare Lösungen etwa 2 bis 20 Gew.-%. Bei Granulaten hängt der Wirkstoffgehalt zum Teil davon ab, ob die wirksame Verbindung flüssig oder fest vorliegt und welche Granulierhilfsmittel, Füllstoffe usw. verwendet werden.

Daneben enthalten die genannten Wirkstoffformulierungen gegebenenfalls die jeweils üblichen Haft-, Netz-, Dispergier-, Emulgier-, Penetrations-, Lösungsmittel, Füll- oder Trägerstoffe.

Zur Anwendung werden die in handelsüblicher Form vorliegenden Konzentrate gegebenenfalls in üblicher Weise verdünnt, z.B. bei Spritzpulvern, emulgierbaren Konzentraten, Dispersionen und teilweise auch bei Mikrogranulaten mittels Wasser. Staubförmige und granulierte Zubereitungen sowie versprühbare Lösungen werden vor der Anwendung üblicherweise nicht mehr mit weiteren inerten Stoffen verdünnt.

Mit den äußeren Bedingungen wie Temperatur, Feuchtigkeit u.a. variiert die erforderliche Aufwandmenge. Sie kann innerhalb weiter Grenzen schwanken, z.B. zwischen 0,0005 und 10,0 kg/ha oder mehr Aktivsubstanz, vorzugsweise liegt sie jedoch zwischen 0,001 und 5 kg/ha.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können in ihren handelsüblichen Formulierungen sowie in den aus diesen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen entsprechen allein oder in Mischungen mit anderen Wirkstoffen, wie Insektiziden, Lockstoffen, Sterilantien, Akariziden, Nematiziden, Fungiziden, wachstumsregulierenden Stoffen oder Herbiziden vorliegen.

Zu den Schädlingsbekämpfungsmitteln, mit denen Verbindungen der Formel (I) kombiniert werden können, zählen beispielsweise Phosphorsäureester, Carbamate, Carbonsäureester, Formamidine, Zinnverbindungen, durch Mikroorganismen hergestellte Stoffe u.a..

Bevorzugte Mischungspartner sind

1. aus der Gruppe der Phosphorverbindungen

Acephate, Azamethiphos, Azinphos-ethyl-, Azinphosmethyl, Bromophos, Bromophos-ethyl, Cadusafos (F-67825), Chlorethoxyphos, Chlorfenvinphos, Chlormephos, Chlorpyrifos, Chlorpyrifos-methyl, Demeton, Demeton-S-methyl, Demeton-S-methyl sulfphon, Dialifos, Diazinon, Dichlorvos, Dicrotophos, Dimethoate, Disulfoton, EPN, Ethion, Ethoprophos, Etrimes, Famphur, Fenamiphos, Fenitriothion, Fensulfothion, Fenthion, Fonofos, Formothion, Fosthiazate (ASC-66824) Heptenophos, Isazophos, Isothioate, Isoxathion, Malathion, Methacrifos, Methamidophos, Methidathion, Salithion, Mevinphos, Monocrotophos, Naled, Omethoate, Oxydemeton-methyl, Parathion, Parathion-methyl, Phentoate, Phorate, Phosalone, Phosfolan, Phosphocarb (BAS-301), Phosmet, Phosphamidon, Phoxim, Pirimiphos, Primiphos-ethyl, Pirimiphos-methyl, Profenofos, Propaphos, Proetamphos, Prothifos, Pyraclofos, Pyridapenthion, Quinalphos, Sulprofos, Temephos, Terbufos, Tebupirimfos, Tetrachlorvinphos, Thiometon, Triazophos, Trichlorphon, Vamidothion;

2. aus der Gruppe der Carbamate

Alanycarb (OK-135), Aldicarb, 2-sec.-Butylphenylmethylcarbamate (BPMC), Carbaryl, Carbofuran, Carbosulfan, Cloethocarb, Benfuracarb, Ethiofencarb, Furathiocarb, HCN-801, Isoproc carb, Methomyl, 5-Methyl-m-cumarylbutyryl(methyl)carbamate, Oxamyl, Pirimicarb, Propoxur, Thiodicarb, Thiofanox, 1-Methylthio(ethylideneamino)-N-methyl-N-(morpholinothio)carbamate (UC 51717), Triazamate;

3. aus der Gruppe der Carbonsäureester

Acrinathrin, Allethrin, Alphametrin, 5-Benzyl-3-furylmethyl-(E)-, (1R)-cis-2,2-dimethyl-3-(2-oxothiolan-3-ylidenemethyl)cyclopropanecarboxylate, Beta-Cyfluthrin, Beta-Cypermethrin, Bioallethrin, Bioallethrin((S)-cyclopentylisomer), Bioresmethrin, Bifenthrin, (RS)-1-Cyano-1-(6-phenoxy-2-pyridyl)methyl-(1RS)-trans-3-(4-tert.butylphenyl)-2,2-dimethylcyclopropanecarboxylate (NCI 85193), Cycloprothrin, Cyfluthrin, Cyhalothrin, Cythithrin, Cypermethrin, Cyphenothrin, Deltamethrin, Empenthrin, Esfenvalerate, Fenfluthrin, Fenpropothrin, Fenvalerate, Flucythrinate, Flumethrin, Fluvalinate (D-Isomer), Imiprothrin (S-41311), Lambda-Cyhalothrin, Permethrin, Phenothrin ((R)-Isomer), Prallethrin, Pyrethrine (natürliche Produkte), Resmethrin, Tefluthrin, Tetramethrin, Theta-Cypermethrin (TD-2344), Tralomethrin, Transfluthrin, Zeta-Cypermethrin (F-56701);

4. aus der Gruppe der Amidine

Amitraz, Chlordimeform;

5. aus der Gruppe der Zinnverbindungen

Cyhexatin, Fenbutatinoxide;

6. Sonstige

Abamectin, ABG-9008, Acetamiprid, Anagrypha falcitera, AKD-1022, AKD-3059, ANS-118, Bacillus thuringiensis, Beauveria bassiana, Bensultap, Bifenazate (D-2341), Binapacryl, BJL-932, Bromopropionate, BTG-504, BTG-505, Buprofezin,

Camphechlor, Cartap, Chlorobenzilate, Chlorfenapyr, Chlorfluazuron, 2-(4-Chlorphenyl)-4,5-diphenylthiophen (UBI-T 930), Chlorfentezine, Chromafenozide (ANS-118), CG-216, CG-217, CG-234, A-184699, Cyclopropancarbonsäure-(2-naphthylmethyl)ester (Ro12-0470), Cyromazin, Diacloden (Thiamethoxam), Diafenthiuron, N-(3,5-Dichlor-4-(1,1,2,3,3,3-hexafluor-1-propyloxy)phenyl)carbamoyl)-2-chlorbenzcarboximidsäureethylester, DDT, Dicofol, Diflubenzuron, N-(2,3-Dihydro-3-methyl-1,3-thiazol-2-ylidene)-2,4-xylidine, Dinobuton, Dinocap, Diofenolan, DPX-062, Emamectin-Benzoate (MK-244), Endosulfan, Ethiprole (Sulfethiprole), Ethofenprox, Etoxazole (YI-5301), Fenazaquin, Fenoxy carb, Fipronil, Fluazuron, Flumite (Flufenazine, SZI-121), 2-Fluoro-5-(4-(4-ethoxyphenyl)-4-methyl-1-pentyl)diphenylether (MTI 800), Granulose- und Kernpolyederviren, Fenpyroximate, Fenthiocarb, Flubenzimine, Flucycloxuron, Flufenoxuron, Flufenprox (ICI-A5683), Fluproxyfen, Gamma-HCH, Halofenozide (RH-0345), Halofenprox (MTI-732), Hexaflumuron (DE_473), Hexythiazox, HOI-9004, Hydramethylnon (AC 217300), Lufenuron, Imidacloprid, Indoxacarb (DPX-MP062), Kanemite (AKD-2023), M-020, MTI-446, Ivermectin, M-020, Methoxyfenozide (Intrepid, RH-2485), Milbemectin, NC-196, Neemgard, Nitencyram (TI-304), 2-Nitromethyl-4,5-dihydro-6H-thiazin (DS 52618), 2-Nitromethyl-3,4-dihydrothiazol (SD 35651), 2-Nitromethylene-1,2-thiazinan-3-ylcarbamaldehyde (WL 108477), Pyriproxyfen (S-71639), NC-196, NC-1111, NNI-9768, Novaluron (MCW-275), OK-9701, OK-9601, OK-9602, Propargite, Pymethrozine, Pyridaben, Pyrimidifen (SU-8801), RH-0345, RH-2485, RYI-210, S-1283, S-1833, SB7242, SI-8601, Silafluofen, Silomadine (CG-177), Spinosad, SU-9118, Tebufenozide, Tebufenpyrad (MK-239), Teflubenzuron, Tetradifon, Tetrasul, Thiacloprid, Thiocyclam, TI-435, Tolfenpyrad (OMI-88), Triazamate (RH-7988), Triflumuron, Verbutin, Vertalec (Mykotal), YI-5301,

Die oben genannten Kombinationspartner stellen bekannte Wirkstoffe dar, die zum großen Teil in C.D.S. Tomlin, S.B. Walker, The Pesticide Manual, 11. Auflage (1997), British Crop Protection Council beschrieben sind.

Der Wirkstoffgehalt der aus den handelsüblichen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen kann in weiten Bereichen variieren, die Wirkstoffkonzentration der Anwendungsformen kann von 0,0001 bis zu 95 Gew.-% Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,0001 und 1 Gew.-% liegen. Die Anwendung geschieht in einer den Anwendungsformen angepaßten üblichen Weise.

Der Wirkstoffgehalt der aus den handelsüblichen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen kann von 0,00000001 bis zu 95 Gew.-% Wirkstoff, vorzugsweise zwischen 0,00001 und 1 Gew.-% liegen.

Die Anwendung geschieht in einer den Anwendungsformen angepaßten üblichen Weise.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe eignen sich auch zur Anwendung auf dem veterinarmedizinischen Gebiet, vorzugsweise zur Bekämpfung von Endo- und Ektoparasiten und auf dem Gebiet der Tierhaltung.

Die Anwendung der erfindungsgemäßen Wirkstoffe geschieht hier vorzugsweise in bekannter Weise wie durch orale Anwendung in Form von beispielsweise Tabletten, Kapseln, Tränken, Granulaten, durch dermale Anwendung in Form beispielsweise des Tauchens (Dippen), Sprühens (Sprayen), Aufgießen (pour-on and spot-on) und des Einpuderns sowie durch parenterale Anwendung in Form beispielsweise der Injektion.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) können demgemäß auch besonders vorteilhaft in der Viehhaltung (z.B. Rinder, Schafe, Schweine und Geflügel, wie Hühner, Gänse) eingesetzt werden. In einer bevorzugten Ausführungsform der Erfindung werden den Tieren die Verbindungen der Formel (I) gegebenenfalls in geeigneten Formulierungen (vgl. oben) und gegebenenfalls mit dem Trinkwasser oder Futter oral verabreicht. Da eine Ausscheidung im Kot in wirksamer Weise erfolgt, läßt sich auf diese Weise sehr einfach die Entwicklung von

Insekten im Kot der Tiere verhindern. Die jeweils geeigneten Dosierungen und Formulierungen sind insbesondere von der Art und dem Entwicklungsstadium der Nutztiere und auch vom Befallsdruck abhängig und lassen sich nach den üblichen Methoden leicht ermitteln und festlegen. Die Verbindungen können bei Rindern z.B. in Dosierungen von 0,01 bis 1 mg/kg Körpergewicht eingesetzt werden.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen der Formel (I) zeichnen sich auch durch eine hervorragende fungizide Wirkung aus. Bereits in das pflanzliche Gewebe eingedrungene pilzliche Krankheitserreger lassen sich erfolgreich kurativ bekämpfen. Dies ist besonders wichtig und vorteilhaft bei solchen Pilzkrankheiten, die nach eingetretener Infektion mit den sonst üblichen Fungiziden nicht mehr wirksam bekämpft werden können. Das Wirkungsspektrum der beanspruchten Verbindungen erfaßt verschiedene wirtschaftlich bedeutende, phytopathogener Pilze, wie z.B. Plasmopara viticola, Phytophthora infestans, Erysiphe graminis, Pyricularia oryzae, Pyrenophora teres, Leptosphaera nodorum und Pellicularia sasakii und Puccinia recondita.

Die erfindungsgemäßen Verbindungen eignen sich daneben auch für den Einsatz in technischen Bereichen, beispielsweise als Holzschutzmittel, als Konservierungsmittel in Anstrichfarben, in Kühlenschmiermittel für die Metallbearbeitung oder als Konservierungsmittel in Bohr- und Schneidölen.

Die erfindungsgemäßen Wirkstoffe können in ihren handelsüblichen Formulierungen entweder allein oder in Kombination mit weiteren literaturbekannten Fungiziden angewendet werden.

Als literaturbekannte Fungizide, die erfindungsgemäß mit den Verbindungen der Formel (I) kombiniert werden können, sind z.B. folgende Produkte zu nennen: Aldimorph, Andoprim, Anilazine, BAS 480F, BAS 450F, Benalaxyl, Benodanil, Benomyl, Binapacryl, Bitertanol, Bromuconazol, Buthiobate, Captafol, Captan, Carbendazim, Carboxin, CGA 173506, Cyprofuram, Dichlofluanid, Dichlomezin,

Diclobutrazol, Diethofencarb, Difenconazol (CGA 169374), Difluconazole, Dimethirimol, Dimethomorph, Diniconazole, Dinocap, Dithianon, Dodemorph, Dodine, Edifenfos, Ethirimol, Etridiazol, Fenarimol, Fenfuram, Fenpiclonil, Fenpropidin, Fenpropimorph, Fentinacetate, Fentinhydroxide, Ferimzone (TF164), Fluazinam, Fluobenzimine, Fluquinconazole, Fluorimide, Flusilazole, Flutolani, Flutriafol, Folpet, Fosetylaluminium, Fuberidazole, Fulnsulfamide (MT-F 651), Furalaxy, Furconazol, Furmecyclox, Guazatine, Hexaconazole, ICI A5504, Imazalil, Imibenconazole, Iprobenfos, Iprodione, Isoprothiolane, KNF 317, Kupferverbindungen wie Cu-oxychlorid, Oxine-Cu, Cu-oxide, Mancozeb, Maneb, Mepanipyrim (KIF 3535), Metconazol, Mepronil, Metalaxyl, Methasulfocarb, Methfuroxam, MON 24000, Myclobutanil, Nabam, Nitrothálidopropyl, Nuarimol, Ofurace, Oxadixyl, Oxycarboxin, Penconazol, Pencycuron, PP 969, Probenazole, Propineb, Prochloraz, Procymidon, Propamocarb, Propiconazol, Prothiocarb, Pyracarbolid, Pyrazophos, Pyrifenoxy, Pyroquilon, Rabenzazole, RH7592, Schwefel, Tebuconazole, TF 167, Thiabendazole, Thicyofen, Thiofanatemethyl, Thiram, Tolclofos-methyl, Tolyfluanid, Triadimefon, Triadimenol, Tricyclazole, Tridemorph, Triflumizol, Triforine, Validamycin, Vinchlozolin, XRD 563, Zineb, Natriumdodecylsulfonate, Natrium-dodecyl-sulfat, Natrium-C13/C15-alkohol-ethersulfonat, Natrium-cetostearyl-phosphatester, Dioctyl-natrium-sulfosuccinat, Natrium-isopropyl-naphthalenesulfonat, Natrium-methylenebisnaphthalene-sulfonat, Cetyl-trimethyl-ammoniumchlorid, Salze von langkettigen primären, sekundären oder tertiären Aminen, Alkyl-propyleneamine, Lauryl-pyrimidiniumbromid, ethoxylierte quarternierte Fettamine, Alkyl-dimethyl-benzyl-ammoniumchlorid und 1-Hydroxyethyl-2-alkyl-imidazolin.

Die oben genannten Kombinationspartner stellen bekannte Wirkstoffe dar, die zum großen Teil in C.D.S. Tomlin, S.B. Walker, The Pesticide Manual, 11. Auflage (1997), British Crop Protection Council beschrieben sind.

Der Wirkstoffgehalt der aus den handelsüblichen Formulierungen bereiteten Anwendungsformen kann in weiten Bereichen variieren, die Wirkstoffkonzentration der Anwendungsformen kann von 0,0001 bis zu 95 Gew.-% Wirkstoff, vorzugsweise

zwischen 0,0001 und 1 Gew.-% liegen. Die Anwendung geschieht in einer den Anwendungsformen angepaßten üblichen Weise.

Die Verbindungen der Formel (I) können auch zur Bekämpfung von Schadorganismen in Kulturen von bekannten oder noch zu entwickelnden gentechnisch veränderten Pflanzen eingesetzt werden. Die transgenen Pflanzen zeichnen sich in der Regel durch besondere vorteilhafte Eigenschaften aus, beispielsweise durch Resistenzen gegenüber bestimmten Pflanzenschutzmitteln, Resistenzen gegenüber Pflanzenkrankheiten oder Erregern von Pflanzenkrankheiten wie bestimmten Insekten oder Mikroorganismen wie Pilzen, Bakterien oder Viren. Andere besondere Eigenschaften betreffen z.B. das Erntegut hinsichtlich Menge, Qualität, Lagerfähigkeit, Zusammensetzung und spezieller Inhaltsstoffe. So sind transgene Pflanzen mit erhöhtem Stärkegehalt oder veränderter Qualität der Stärke oder solche mit anderer Fettsäurezusammensetzung des Ernteguts bekannt.

Bevorzugt ist die Anwendung in wirtschaftlich bedeutenden transgenen Kulturen von Nutz- und Zierpflanzen, z.B. von Getreide wie Weizen, Gerste, Roggen, Hafer, Hirse, Reis, Maniok und Mais oder auch Kulturen von Zuckerrübe, Baumwolle, Soja, Raps, Kartoffel, Tomate, Erbse und anderen Gemüsesorten.

Bei der Anwendung in transgenen Kulturen, insbesondere mit Insektenresistenzen treten neben den in anderen Kulturen zu beobachtenden Wirkungen gegenüber Schadorganismen oftmals Wirkungen auf, die für die Applikation in der jeweiligen transgenen Kultur spezifisch sind, beispielsweise ein verändertes oder speziell erweitertes Spektrum an Schädlingen, die bekämpft werden können, oder veränderte Aufwandmengen, die für die Applikation eingesetzt werden können.

Gegenstand der Erfindung ist deshalb auch die Verwendung von Verbindungen der Formel (I) zur Bekämpfung von Schadorganismen in transgenen Kulturpflanzen.

Auf den Inhalt der deutschen Patentanmeldung 198 15 026.1, deren Priorität die vorliegende Anmeldung beansprucht, sowie auf den Inhalt der beiliegenden Zusammenfassung wird hiermit ausdrücklich Bezug genommen; sie gelten durch Zitat als Bestandteil dieser Beschreibung.

Nachfolgende Beispiele dienen zur Erläuterung der Erfindung, ohne daß diese darauf beschränkt wäre.

A. Formulierungsbeispiele

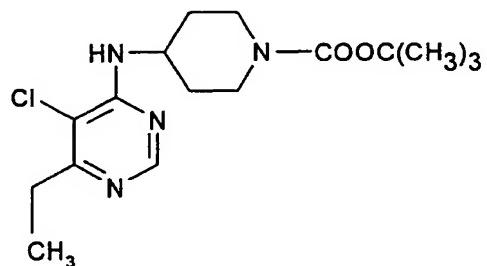
- a) Ein Stäubemittel wird erhalten, indem man 10 Gew.-Teile Wirkstoff und 90 Gew.-Teile Talcum als Inertstoff mischt und in einer Schlagmühle zerkleinert.
- b) Ein in Wasser leicht dispergierbares, benetzbares Pulver wird erhalten, indem man 25 Gew.-Teile Wirkstoff, 65 Gew.-Teile kaolinhaltigen Quarz als Inertstoff, 10 Gew.-Teile ligninsulfonsaures Kalium und 1 Gew.-Teil oleoylmethyltaurinsaures Natrium als Netz- und Dispergiermittel mischt und in einer Stiftmühle mahlt.
- c) Ein in Wasser leicht dispergierbares Dispersionskonzentrat stellt man her, indem man 40 Gew.-teile Wirkstoff mit 7 Gew.-Teilen eines Sulfobernsteinsäurehalbesters, 2 Gew.-Teilen eines Ligninsulfonsäure-Natriumsalzes und 51 Gew.-Teilen Wasser mischt und in einer Reibkugelmühle auf eine Feinheit von unter 5 Mikron vermahlt.
- d) Ein emulgierbares Konzentrat läßt sich herstellen aus 15 Gew.-Teilen Wirkstoff, 75 Gew.-Teilen Cyclohexan als Lösungsmittel und 10 Gew.-Teilen oxethyliertem Nonylphenol (10 EO) als Emulgator.

42

- e) Ein Granulat lässt sich herstellen aus 2 bis 15 Gew.-Teilen Wirkstoff und einem inerten Granulaträgermaterial wie Attapulgit, Bimsgranulat und/oder Quarzsand. Zweckmäßigerweise verwendet man eine Suspension des Spritzpulvers aus Beispiel b) mit einem Feststoffanteil von 30 % und spritzt diese auf die Oberfläche eines Attapulgitgranulats, trocknet und vermischt innig. Dabei beträgt der Gewichtsanteil des Spritzpulvers ca. 5 % und der des inerten Trägermaterials ca. 95 % des fertigen Granulats.

B. Herstellungsbeispiele

Beispiel A



4-(N-tert.-Butoxycarbonyl-piperidin-1-ylamino)-5-chlor-6-ethyl-pyrimidin

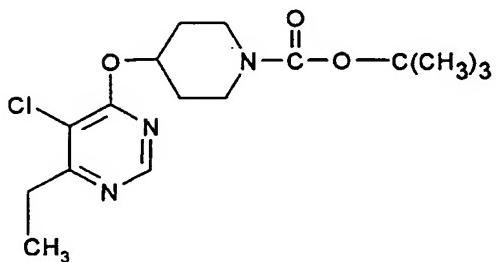
17,7 g (0,10 mol) 4,5-Dichlor-6-ethylpyrimidin, 20,0 g 1-(tert.-Butoxycarbonyl)-4-amino-piperidin (0,10 mol) wurden mit 15,2 g (0,15 mol) Triethylamin 8 Stunden auf 80-90° erhitzt. Nach Abkühlen wurde mit Wasser/Dichlormethan aufgearbeitet, die organische Phase getrocknet und eingeengt. Das Rohprodukt wurde zur Reinigung an Kieselgel chromatographiert (Petrolether/Ethylacetat 1:1). Man erhielt 21,7 g (63,6 % der Theorie) eines farblosen Öls, das allmählich erstarnte.

Fp. 78-79°C.

Herstellung des Ausgangsprodukts 1-(tert.-Butoxycarbonyl)-4-amino-piperidin

100,0 g (0,50 mol) 1-tert.-Butoxycarbonyl-4-piperidon wurde in 300 ml mit Ammoniak gesättigtem Methanol in Gegenwart von 20,0 g Raney-Nickel bei 100°C und 100 bar Wasserstoff-Druck reduktiv aminiert. Nach Abfiltrieren des Katalysators wurde eingeengt. Man erhielt 95,5 g eines braunen Öls (95,4 % der Theorie).

Beispiel B



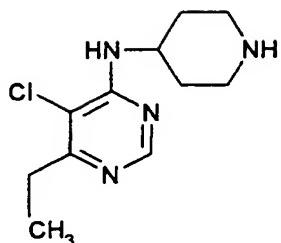
4-(1-tert.-Butoxycarbonyl-piperidin-4-yloxy)-5-chlor-6-ethyl-pyrimidin

Zu einer Lösung von 2,0 g (10 mmol) 1-tert.-Butoxycarbonyl-piperidin-4-ol und 1,8 g (10 mmol) 4,5-Dichlor-6-ethyl-pyrimidin in 25 ml Tetrahydrofuran gab man 0,4 g (10 mmol) Natriumhydrid (80 %ige Dispersion in Öl), rührte 2 Stunden bei Raumtemperatur und 1 Stunde unter Rückfluß. Nach Abkühlen wurde eingeengt, mit Wasser/Toluol aufgenommen, die organische Phase getrocknet und eingeengt. Zur Reinigung wurde an Kieselgel chromatographiert (Petrolether/Ethylacetat 7:3). Man erhielt 2,5 g (73,5 % der Theorie) eines gelben Öls.

¹H-NMR (CDCl₃): δ = 8,51 (s, 1H, Pyrimidin-H); 5,38 (m, 1H, OCH); 4,70 (m, 2H, Piperidin-H); 3,42 (m, 2H, Piperidin-H); 2,90 (q, 2H, CH₂CH₃); 1,98 (m, 2H, Piperidin-H); 1,8 (m, 2H, Piperidin-H); 1,48 (s, 9H, tert.-Butyl); 1,39 (tr, 3H, CH₂CH₃).

Beispiel C

Zwischenprodukt

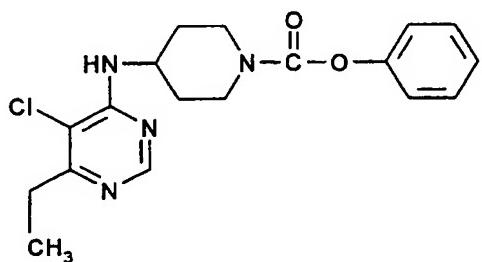


5-Chlor-6-ethyl-4-(piperidin-4-ylamino)-pyrimidin

20,7 g (0,61 mmol) 4-(tert.-Butoxycarbonyl-piperidin-4-ylamino)-5-chlor-6-ethyl-pyrimidin (Beispiel A) wurde in 100 ml Dichlorethan gelöst und 148,0 g Trifluoressigsäure langsam zugegeben. Nach Ende der CO₂-Entwicklung wurde noch 2 Stunden nachgerührt. Nach Abziehen des Lösungsmittel und der Trifluoressigsäure wurde eingeengt, und der Rückstand in Dichlormethan/Wasser aufgenommen. Nachdem das Gemisch durch Zugabe von verdünnter Natronlauge schwach basisch gestellt wurde, wurde die organische Phase abgetrennt, getrocknet und eingeengt. Man erhielt 12,3 g (83,9 % der Theorie) eines gelben Feststoffs.

Fp.: 150-151°C.

Beispiel D



5-Chlor-6-ethyl-4-(1-phenoxy carbonyl-piperidin-4-ylamino)-pyrimidin

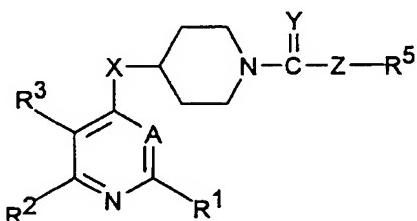
1,2 g (5 mmol) 5-Chlor-6-ethyl-4-(piperidin-4-ylamino)-pyrimidin (Beispiel C) und

0,6 g (6 mmol) Triethylamin wurden in 20 ml Dichlormethan vorgelegt und bei 20-30°C 0,9 g (6 mmol) Chlorameisensäurephenylester zugetropft. Nach Stehen über Nacht wurde mit Wasser ausgerührt, die organische Phase getrocknet und eingeengt. Zur Reinigung wurde an Kieselgel chromatographiert (Petrolether/Ethylacetat 1:1). Man erhielt 1,4 g (77,6 % der Theorie) Produkt als farblosen Feststoff.

Fp.: 105-106°C

Analog den oben angeführten Synthesebeispielen können auch die nachfolgend aufgeführten Beispiele der Tabelle 1 hergestellt werden.

Tabelle 1



Beisp. Nr.	R ¹	R ²	R ³	A	Y	Z	X	R ⁵	phys. Daten
1	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	Methyl	
2	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	S	NH	Methyl	Fp. 91-92°C
3	H	C ₂ H ₅	Cl	N	S	S	NH	Methyl	
4	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	Ethyl	
5	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	n-Propyl	
6	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	i-Propyl	Fp. 65-66°C
7	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	n-Butyl	Öl
8	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	i-Butyl	Öl
9	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	sek.-Butyl	
10	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	tert-Butyl	Fp. 78-79°C
11	H	C ₂ H ₅	Cl	CH	O	O	NH	tert-Butyl	
12	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	S	NH	tert-Butyl	
13	H	C ₂ H ₅	Cl	N	S	S	NH	tert-Butyl	

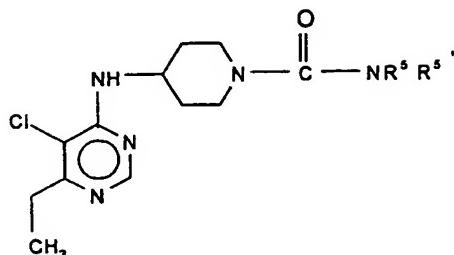
Beisp. Nr.	R ¹	R ²	R ³	A	Y	Z	X	R ⁵	phys. Daten
14	CH ₃	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	tert-Butyl	
15	Cl	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	tert-Butyl	
16	F	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	tert-Butyl	
17	H	CH ₂ OCH ₃	OCH ₃	N	O	O	NH	tert-Butyl	Öl
18	H	CH ₂ OCH ₃	OCH ₃	N	O	S	NH	tert-Butyl	
19	H	CH ₂ OCH ₃	OCH ₃	N	S	S	NH	tert-Butyl	
20	H	C ₂ H ₅	CH=CH ₂	N	O	O	NH	tert-Butyl	
21	H	C ₂ H ₅	C≡CH	N	O	O	NH	tert-Butyl	
22	H	CHFCH ₃	Cl	N	O	O	NH	tert-Butyl	
23	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	O	tert-Butyl	Öl
24	H	CH ₂ OCH ₃	OCH ₃	N	O	O	O	tert-Butyl	
25	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	n-Pentyl	
26	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	C(CH ₃) ₂ C ₂ H ₅	
27	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	CH ₂ C(CH ₃) ₃	Fp. 104-105°C
28	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	n-Hexyl	
29	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	n-Heptyl	
30	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	n-Octyl	Öl
31	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	CH ₂ CF ₃	
32	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	CH ₂ CCl ₃	Öl
33	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	CH ₂ CH ₂ OCH ₃	
34	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	CH ₂ CH=CH ₂	
35	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	CH ₂ -CH=CH-CH ₃	
36	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	CH ₂ -C≡CH	
37	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	CH ₂ -C≡C-CH ₃	
38	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	Benzyl	Fp. 120-121°C
39	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	4-Fluorbenzyl	
40	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	4-Chlorbenzyl	
41	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	4-Methylbenzyl	
42	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	4-Trifluormethylbenzyl	
43	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	4-Methoxybenzyl	
44	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	1-Phenylethyl	
45	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	2-Phenylethyl	

Beisp. Nr.	R ¹	R ²	R ³	A	Y	Z	X	R ⁵	phys. Daten
46	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	C(CH ₃) ₂ CCl ₃	Fp. 125-126°C
47	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	Cinnamyl	
48	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	Phenylpropargyl	
49	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	Phenyl	Fp. 105-106°C
50	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	O	Phenyl	
51	H	C ₂ H ₅	Cl	CH	O	O	NH	Phenyl	
52	H	C ₂ H ₅	Cl	N	S	O	NH	Phenyl	Fp. 117-119°C
53	H	C ₂ H ₅	Cl	N	S	S	NH	Phenyl	Fp. 123-124°C
54	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	S	NH	Phenyl	
55	CH ₃	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	Phenyl	
56	Cl	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	Phenyl	
57	F	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	Phenyl	
58	H	CH ₂ OCH ₃	OCH ₃	N	O	O	NH	Phenyl	
59	H	C ₂ H ₅	CH=CH ₂	N	O	O	NH	Phenyl	
60	H	C ₂ H ₅	C≡CH	N	O	O	NH	Phenyl	
61	H	CHFCH ₃	Cl	N	O	O	NH	Phenyl	
62	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	4-Fluorphenyl	Fp. 118-119°C
63	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	4-Chlorphenyl	
64	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	4-Methylphenyl	Fp. 127-128°C
65	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	4-Methoxyphenyl	Fp. 123-124°C
66	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	4-Trifluormethyl-phenyl	
67	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	4-Carbomethoxy-phenyl	Fp. 152-153°C
68	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	2,4-Difluorphenyl	Fp. 115-116°C
69	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	2-Fluor-4-chlorphenyl	Fp. 123-124°C
70	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	2-Chlor-4-fluorphenyl	Fp. 126-127°C
71	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	2,6-Difluorphenyl	
72	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	2,6-Dichlorphenyl	
73	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	2,4,6-Trichlorphenyl	

Beisp. Nr.	R ¹	R ²	R ³	A	Y	Z	X	R ⁵	phys. Daten
74	H	C ₂ H ₅	Cl	N	S	O	NH	2,4,6-Trichlorphenyl	Öl
75	H	C ₂ H ₅	Cl	N	S	O	NH	4-Methylphenyl	Fp. 158-160°C
76	H	C ₂ H ₅	Cl	N	S	O	NH	4-Fluorphenyl	Fp. 158-159°C
77	H	C ₂ H ₅	Cl	N	S	O	NH	4-Chlorphenyl	Fp. 110-112°C
78	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	2-Thienyl	
79	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	3-Thienyl	
80	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	2-Pyridyl	
81	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	3-Pyridyl	
82	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	4-Pyridyl	
83	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	Cyclopropyl	
84	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	Cyclobutyl	
85	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	Cyclopentyl	
86	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	Cyclohexyl	
87	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	1-Methylcyclopentyl	
88	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	1-Methylcyclohexyl	
89	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	Tetrahydrofuryl	
90	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	1,2,3,4-Tetrahydro-1-naphthyl	
91	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	1,2,3,4-Tetrahydro-2-naphthyl	
92	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	5,6,7,8-Tetrahydro-1-naphthyl	
93	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	O	NH	5,6,7,8-Tetrahydro-2-naphthyl	
94	H	C ₂ H ₅	Cl	N	S	NH	NH	Phenyl	
95	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	NH	NH	p-Tolyl	Fp. 173-174°C
96	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	NH	NH	p-Fluorophenyl	Fp. 191-192°C
97	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	NH	NH	p-Isopropylphenyl	Fp. 131-132°C
98	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	NH	NH	tert-Butyl	Fp. 138-139°C

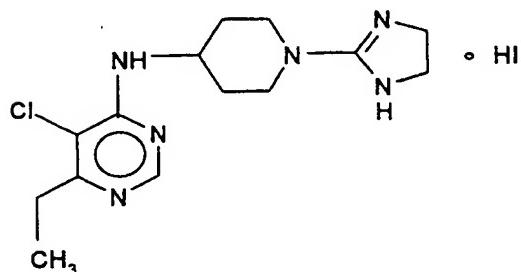
Beisp. Nr.	R ¹	R ²	R ³	A	Y	Z	X	R ⁵	phys. Daten
99	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	NH	NH	Cyclohexyl	Fp. 160-162°C
100	H	C ₂ H ₅	Cl	N	O	NCH ₃	NH	Phenyl	Fp. 92-94°C
101	H	C ₂ H ₅	Cl	N	S	NCH ₃	NH	Methyl	Fp. 135-136°C
102	H	C ₂ H ₅	Cl	N	NO ₂	NH	NH	H	Fp. 210-212°C Zers.
103	H	C ₂ H ₅	Cl	N	NCN	S	NH	CH ₃	Fp. 163-164°C
104	H	C ₂ H ₅	Cl	N	NCN	NH	NH	n-Octyl	Fp. 93-94°C
105	H	C ₂ H ₅	Cl	N	NCN	NH	NH	2-Octyl	Fp. 142-143°C

weitere Beispiele:

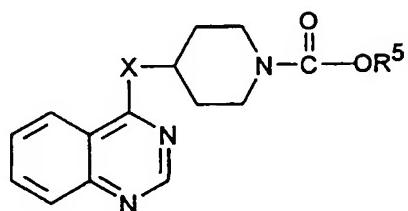


Beispiel 106 $\text{NR}^5\text{R}^5' = \text{Pyrrolidin}$ Fp. 93-94°C

Beispiel 107 $\text{NR}^5\text{R}^5' = \text{Morpholin}$ Fp. 146-147°C



Beispiel 108 Fp. 225 - 226°C

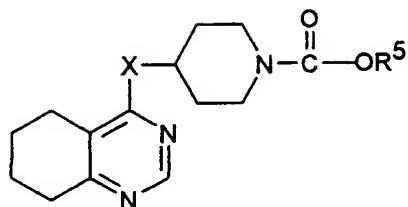


Beispiel 110 $X = \text{NH}$ $\text{R}^5 = \text{tert.-Butyl}$

Beispiel 111 $X = \text{NH}$ $\text{R}^5 = \text{Phenyl}$

Beispiel 112 $X = \text{O}$ $\text{R}^5 = \text{tert.-Butyl}$

Beispiel 113 $X = \text{O}$ $\text{R}^5 = \text{Phenyl}$



Beispiel 114	$X = NH$	$R^5 = \text{tert.-Butyl}$
Beispiel 115	$X = NH$	$R^5 = \text{Phenyl}$
Beispiel 116	$X = O$	$R^5 = \text{tert.-Phenyl}$
Beispiel 117	$X = O$	$R^5 = \text{Phenyl}$

Biologische Beispiele

Verwendung als Fungizid

Die Verbindungen wurden auf ihre Aktivität gegen eine oder mehrere der folgenden Organismen geprüft:

Plasmopara viticola

Erysiphe graminis f. sp. tritici

Pyricularia oryzae

Leptosphaeria nodorum

Wässrige Lösungen oder Dispersionen der Verbindungen in der gewünschten Konzentration unter Zusatz eines Benetzungsmittels wurden auf Blätter bzw. Stengel der Testpflanze appliziert. Die Pflanzen oder Pflanzenteile wurden mit dem jeweiligen Test-Pathogen inkuliert und unter kontrollierten Umweltbedingungen gehalten, die für das Pflanzenwachstum und die Entwicklung der Krankheit geeignet sind. Nach einer geeigneten Zeit wurde das Maß der Infektion der befallenen Pflanze visuell abgeschätzt. Die Verbindungen werden gemäß einer Skala von 1 bis 3, in der 1 keine bis geringe Kontrolle, 2 mittlere Kontrolle und 3 gute bis

vollständige Kontrolle bedeuten, beurteilt. Bei einer Konzentration von 500 ppm oder geringer wurden die folgenden Verbindungen mit 2 oder höher gegen die aufgeführten Pilze eingestuft.

Beispiel A

Wirkung gegen *Erysiphe graminis f. sp. tritici* (Weizenmehltau)

Die folgenden Verbindungen wurden mit 2 oder höher eingestuft: Beispiel Nr.: 10.

Beispiel B

Wirkung gegen *Plasmopara viticola* (falscher Mehltau)

Die folgenden Verbindungen wurden mit 2 oder höher eingestuft: Beispiele Nr.: 6, 7, 8, 10, 27, 46, 49, 62, 68.

Beispiel C

Wirkung gegen *Phytophthora infestans*

Die folgenden Verbindungen wurden mit 2 oder höher eingestuft: Beispiele Nr.: 6, 8, 10, 23, 49, 64, 68.

Beispiel D

Wirkung gegen *Leptosphaeria nodorum*

Die folgenden Verbindungen wurden mit 2 oder höher eingestuft: Beispiele Nr.: 10, 62, 68.

Beispiel E

Wirkung gegen *Pyricularia oryzae*

Die folgenden Verbindungen wurden mit 2 oder höher eingestuft: Beispiele Nr.: 7, 62.

Verwendung als Akarizid, Insektizid, Nematizid**Beispiel F****Wirkung gegen *Tetranychus urticae* (Tauchversuch)**

Abgeschnittene Stengel mit einem Blatt von Bohnenpflanzen (*Phaseolus vulgaris*) wurden in mit Leitungswasser gefüllte Braunglasfläschchen übertragen und anschließend mit ca. 100 Spinnmilben (*Tetranychus urticae*) belegt. Pflanzenblatt und Spinnmilben wurden dann für 5 Sekunden in eine wäßrige Lösung des zu prüfenden und formulierten Präparates getaucht. Nach dem Abtropfen wurden Pflanze und Tiere in einer Klimakammer gelagert (16 Stunden Licht/Tag, 25°C, 40-60 % RF). Nach 6 Tagen Lagerung wurde die Wirkung des Präparates auf alle Stadien der Spinnmilben festgestellt. Bei einer Konzentration von 300 ppm (bezogen auf den Gehalt an Wirkstoff) bewirkten die Präparate gemäß Beispiel Nr. 2, 6, 7, 8, 10, 17, 23, 27, 46, 52, 53, 49, 62, 65, 68, 69, 70, 75 und 77 eine 90-100 %ige Mortalität.

Beispiel G**Wirkung gegen *Aphis fabae***

Angekeimte Ackerbohnen-Samen (*Vicia faba*) mit Keimwurzeln wurden in mit Leitungswasser gefüllte Braunglasfläschchen übertragen und anschließend mit ca. 100 schwarzen Bohnenblattläusen (*Aphis fabae*) belegt. Pflanzen und Blattläuse wurden dann für 5 Sekunden in eine wäßrige Lösung des zu prüfenden und formulierten Präparates getaucht. Nach dem Abtropfen wurden Pflanze und Tiere in einer Klimakammer gelagert (16 Stunden Licht/Tag, 25°C, 40-60 % RF). Nach 3 und 6 Tagen Lagerung wurde die Wirkung des Präparates auf die Blattläuse festgestellt. Bei einer Konzentration von 300 ppm (bezogen auf den Gehalt an Wirkstoff) bewirkten die Präparate gemäß Beispiel Nr. 6, 7, 8, 10, 17, 23, 49, 53, 62, 64, 65, 68, 70, 75 und 76 eine 90-100 %ige Mortalität der Blattläuse.

Beispiel H**Wirkung gegen Nilaparvata lugens**

Die Blätter von 12 Reispflanzen mit einer Halmlänge von 8 cm wurden für 5 Sekunden in eine wäßrige Lösung des zu prüfenden und formulierten Präparates getaucht. Nach dem Abtropfen wurden die so behandelten Reispflanzen in eine Petrischale gelegt und mit ca. 20 Larven (L3-Stadium) der Reiszikadenart *Nilaparvata lugens* besetzt. Nach dem Verschließen der Petrischale wurde diese in einer Klimakammer gelagert (16 Stunden Licht/Tag, 25°C, 40-60 % RF). Nach 6 Tagen Lagerung wurde die Mortalität der Zikadenlarven bestimmt. Bei einer Konzentration von 300 ppm (bezogen auf den Gehalt an Wirkstoff) bewirkten die Präparate gemäß Beispiel Nr. 6, 7, 8, 49, 52, 53, 62, 64, 65, 68, 70, 75, 96 eine 90-100 %ige Mortalität.

Beispiel I**Wirkung gegen *Heliothis virescens* (Ovizid-Wirkung)**

Eine Petrischale, deren Boden mit Filterpapier belegt war und ca. 5 ml Nährmedium enthielt, wurde vorbereitet. Filterpapierstücke mit ca. 30, 24, Stunden alten Eiern der Amerikanischen Tabakkospeneule (*Heliothis virescens*) wurden für 5 Sekunden in einer wäßrigen Lösung des zu prüfenden und formulierten Präparates getaucht und anschließend in der Petrischale ausgelegt. Weitere 200 µl der wäßrigen Lösung wurden über das Nährmedium verteilt. Nach dem Verschließen der Petrischale wurde diese bei ca. 25°C in einer Klimakammer gelagert. Nach 6 Tagen Lagerung wurde die Wirkung des Präparates auf die Eier und die evtl. hieraus geschlüpften Larven festgestellt. Bei einer Konzentration von 300 ppm (bezogen auf den Gehalt an Wirkstoff) bewirkten die Präparate gemäß Beispiel Nr. 2, 6, 7, 8, 10, 17, 23, 49, 52, 53, 62, 64, 65, 68, 69, 70, 75, 76 und 100 eine 90-100 %ige Mortalität.

Beispiel J**Wirkung gegen Spodoptera littoralis**

Eine Petrischale, deren Boden mit Filterpapier belegt war und ca. 5 ml Nährmedium enthielt, wurde vorbereitet. Fünf L2-Larven des Ägyptischen Baumwollwurms (*Spodoptera littoralis*) wurden in einen kleinen Becher eingezählt. 200 µl einer wässrigen Lösung des zu prüfenden und formulierten Präparates wurde in den Becher pipettiert. Danach wurden die behandelten Larven in die Petrischale ausgegossen und weitere 200 µl der wässrigen Lösung wurden über das Nährmedium verteilt. Nach dem Verschließen der Petrischale wurde diese bei ca. 25°C in einer Klimakammer gelagert. Nach 6 Tagen Lagerung wurde die Wirkung des Präparates auf die Larven festgestellt. Bei einer Konzentration von 300 ppm (bezogen auf den Gehalt an Wirkstoff) bewirkten die Präparate gemäß Beispiel Nr. 6, 7, 8, 49, 53, 62, 64, 65, 68, 70 eine 90-100 %ige Mortalität der Larven.

Beispiel K**Wirkung gegen Meloidogyne incognita (Nematizide Wirkung)**

In einem Glasgefäß wurde zu ca. 3000 frischgeschlüpften, aktiven (mobilen) Larven (2. Entwicklungsstadium) des Wurzelgallennematoden (*Meloidogyne incognita*) eine wässrige Lösung des zu prüfenden und formulierten Präparates zugesetzt (Endvolumen 20 ml). Nach 6-tägiger Dauerexposition der Nematodenlarven wurde der prozentuale Anteil der durch die Einwirkung des Präparates bewegungslos (immobil) gewordenen Individuen im Vergleich zu den unbehandelten Kontrollen bestimmt (Prozent nematizide Kontaktwirkung). Bei einer Konzentration von 3 ppm, bezogen auf den Gehalt an Wirkstoff, bewirkten die Präparate gemäß Beispiel Nr. 53, 65 und 69 eine 90-100 %ige Wirkung gegenüber dem Wurzelgallennematoden *Meloidogyne incognita*.

Beispiel L**Wirkung gegen Diabrotica undecimpunctata**

Eine Petrischale, deren Boden zur Hälfte mit Filterpapier belegt war und ein angekeimtes Maiskorn auf einem feuchten Wattetupfer enthielt, wurde vorbereitet.

Auf das Filterpapier wurden ca. 50, 4-5 Tage alte Eier des Maiswurzelwurms (*Diabrotica undecimpunctata*) übertragen. Drei Tropfen von 200 µl einer wäßrigen Lösung des zu prüfenden und formulierten Präparates wurde auf die Eier und der Rest auf das Maiskorn pipettiert. Nach dem Verschließen der Petrischale wurde diese bei ca. 25°C in einer Klimakammer gelagert. Nach 6 Tagen Lagerung wurde die Wirkung des Präparates auf die Eier und die evtl. hieraus geschlüpften Larven festgestellt. Bei einer Konzentration von 300 ppm (bezogen auf den Gehalt an Wirkstoff) bewirkten die Präparate gemäß Beispiel Nr. 6, 7, 8, 23, 46, 49, 53, 62, 68, 70 eine 90-100 %ige Mortalität.

Beispiel M

Wirkung gegen *Carpocapsa pomonella* (Ovizid-Wirkung)

Ca. 20 Eier des Apfelwicklers (*Carpocapsa pomonella*) wurden in eine mit Nährmedium gefüllte Petrischale gelegt. Nährmedium und Eier wurden dann mit einer wäßrigen Lösung des zu prüfenden und formulierten Präparates besprüht. Anschließend wurde die Petrischale mit einem Deckel verschlossen. Nach 8 Tagen Lagerung bei ca. 23°C wurde die Wirkung des Präparates auf die Eier und die evtl. hieraus geschlüpften Larven festgestellt. Bei einer Konzentration von 300 ppm (bezogen auf den Gehalt an Wirkstoff) bewirkten die Präparate gemäß Beispiel Nr. 10 und 62 eine 90-100 %ige Mortalität.

Verwendung als Antiparasitikum

Beispiel N

In vitro-Test an tropischen Rinderzecken (*Boophilus microplus*)

In folgender Versuchsanordnung ließ sich die Wirksamkeit der erfindungsgemäßen Verbindungen gegen Zecken nachweisen:

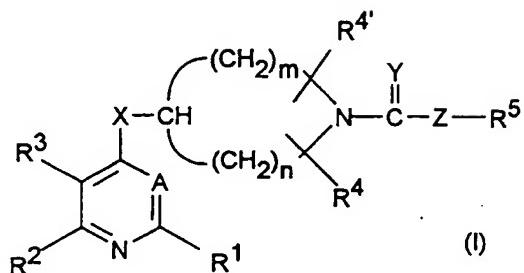
Zur Herstellung einer geeigneten Wirkstoffzubereitung wurden die Wirkstoffe 10 %ig (G/V) in einer Mischung bestehend aus Dimethylformamid (85 g), Nonylphenolpolyglykolether (3 g) und oxethyliertes Rhizinusöl (7 g), gelöst und die so erhaltenen Emulsionskonzentrate mit Wasser auf eine Prüfkonzentration von 1000 ppm verdünnt. In dieser Wirkstoffverdünnung wurden jeweils zehn vollgesogene Weibchen der tropischen Zecke, Boophilus microplus, für fünf Minuten eingetaucht. Die Zecken wurden anschließend auf Filterpapier getrocknet und dann zum Zwecke der Eiablage mit der Rückseite auf einer Klebefolie befestigt. Die Aufbewahrung der Zecken erfolgte im Wärmeschrank bei 28°C und einer Luftfeuchtigkeit von 90 %.

Zur Kontrolle wurden Zeckenweibchen lediglich in Wasser eingetaucht. Zur Bewertung der Wirksamkeit wurde zwei Wochen nach der Behandlung die Hemmung der Eiablage herangezogen.

In diesem Test bewirken die Verbindungen gemäß der Beispiele Nr. 6, 10, 17, 27, 46, 49, 53, 62, 64, 69 jeweils eine 100 %ige Hemmung der Eiablage.

Patentansprüche:

1. Verbindung der Formel (I),



in welcher

R^1 Wasserstoff, Halogen, (C_1 - C_8)-Alkyl, (C_1 - C_8)-Halogenalkyl, (C_1 - C_8)-Alkoxy oder (C_3 - C_6)-Cycloalkyl bedeutet;

R^2 und R^3 gleich oder verschieden sind und jeweils Wasserstoff, (C_1 - C_8)-Alkyl, (C_2 - C_8)-Alkenyl, (C_2 - C_8)-Alkinyl, (C_1 - C_8)-Alkoxy, Halogen, Hydroxy, Cyano, Nitro, Thiocyano, (C_1 - C_8)-Alkanoyl, (C_1 - C_8)-Alkoxycarbonyl, (C_1 - C_8)-Akylthio, (C_1 - C_8)-Alkylsulfinyl, (C_1 - C_8)-Alkylsulfonyl, Amino, (C_1 - C_8)-Alkylamino, (C_1 - C_8)-Dialkylamino oder (C_3 - C_6)-Cycloalkyl bedeuten,

wobei in den Alkyl-, Cycloalkyl, Alkenyl-, Alkinyl-Resten oder den hiervon abgeleiteten Gruppen wie der Alkoxy-, Akylthio-, Alkanoyl-, Alkoxycarbonyl-, Akylthio-, Alkylsulfinyl-, Alkylsulfonyl-, Alkylamino- oder der Dialkylamino-, eine gesättigte Kohlenstoff-Einheit durch eine Heteroatom-Einheit, wie Sauerstoff, $S(O)_x$, mit $x = 0, 1$ oder 2 oder Dimethylsilyl ersetzt sein kann und weiterhin in diesen Resten oder den davon abgeleiteten Gruppen bis zu drei Wasserstoffatome durch Halogen, im Falle von Fluor auch alle Wasserstoffatome durch Fluor ersetzt sein können; oder

R^2 und R^3 zusammen mit den Kohlenstoffatomen, an die sie gebunden sind, einen ungesättigten 5- oder 6-gliedrigen isocyclischen Ring bilden, der, falls es sich um einen 5-Ring handelt, an Stelle von CH_2 ein Sauerstoff- oder Schwefelatom enthalten kann oder der, falls es sich um einen 6-Ring handelt, an Stelle von einer oder zwei CH -Einheiten ein oder zwei Stickstoffatome

enthalten kann und der gegebenenfalls durch 1, 2 oder 3 gleiche oder verschiedene Reste substituiert ist und diese Reste (C₁-C₄)-Alkyl, (C₁-C₄)-Halogenalkyl, Halogen, (C₁-C₄)-Alkoxy oder (C₁-C₄)-Halogenalkoxy bedeuten; oder

R² und R³ zusammen mit den Kohlenstoffatomen, an die sie gebunden sind, einen gesättigten 5-, 6- oder 7-gliedrigen isocyclischen Ring bilden, der an Stelle von einer oder zwei CH₂-Gruppen Sauerstoff und/oder Schwefel enthalten kann und der gegebenenfalls durch 1, 2 oder 3 (C₁-C₄)-Alkylgruppen substituiert ist;

A CH oder N bedeutet;

X NH, Sauerstoff oder S(O)_q mit q = 0, 1 oder 2 bedeutet;

Y und Z gleich oder verschieden sind und jeweils Sauerstoff, Schwefel oder eine Gruppe NR⁵ oder NR⁵' bedeuten, wobei R⁵ und R⁵' gleich oder verschieden sind und jeweils die nachstehend zu R⁵ angegebenen Bedeutungen haben; oder für den Fall, daß Y Schwefel oder eine Gruppe NR⁵ bedeutet, Z auch eine direkte Bindung sein kann, oder für den Fall, daß Y eine Gruppe NR⁵' bedeutet, R⁵ auch zusätzlich Nitro, Cyano, Hydroxy, Alkoxy oder eine Gruppe NR^{5''}R^{5'''} bedeuten kann, wobei R^{5''} und R^{5'''} gleich oder verschieden sind und jeweils die nachstehend zu R⁵ angegebenen Bedeutungen haben können, m und n gleich oder verschieden sind und die Zahlen 1, 2, 3, 4 oder 5 bedeuten und die Summe aus m und n die Zahl 6 nicht überschreitet;

R⁴ und R⁴' gleich oder verschieden sind und jeweils Wasserstoff, (C₁-C₄)-Alkyl, (C₁-C₄)-Halogenalkyl, Halogen oder (C₁-C₄)-Alkoxy bedeuten;

R⁵ Alkyl, Alkenyl, Alkinyl, Aryl, Heterocyclyl bedeutet, wobei die aufgeführten Aryl- oder Heterocyclyl-Reste unsubstituiert oder mit bis zu drei, im Falle von Fluor auch bis zur Maximalanzahl an gleichen oder verschiedenen Resten versehen sein können und in den genannten Alkyl, Alkenyl- oder Alkinyl-Resten eine oder mehrere nicht benachbarte gesättigte Kohlenstoff-Einheiten durch eine Carbonyl-Gruppe oder durch Heteroatom-Einheiten, wie Sauerstoff, S(O)_x, mit x = 0, 1 oder 2, NR⁶ oder SiR⁷R⁸ ersetzt sein können, wobei R⁶ Wasserstoff, (C₁-C₄)-Alkyl, (C₁-C₄)-Alkoxy oder (C₁-C₄)-Alkanoyl

bedeutet und R⁷ und R⁸ (C₁-C₄)-Alkyl bedeuten; und worin darüber hinaus 3 bis 12 Atome dieser gegebenenfalls wie vorstehend modifizierten Kohlenwasserstoff-Reste einen Cyclus bilden können; und diese Kohlenwasserstoff-Reste mit oder ohne den angegebenen Variationen, gegebenenfalls mit einem oder mehreren, im Falle von Fluor bis zur Maximalanzahl an gleichen oder verschiedenen Resten aus der Reihe Halogen, Aryl, Aryloxy, Arylthio, Cycloalkyl, Cycloalkoxy, Cycloalkylthio, Heterocycl, Heterocyclyloxy, Heterocyclthio, Alkanoyl, Cycloalkanoyl, Halogenalkanoyl, Aroyl, Arylalkanoyl, Cycloalkylalkanoyl, Heterocyclalkanoyl, Alkoxycarbonyl, Halogenalkoxycarbonyl, Cycloalkoxycarbonyl, Cycloalkylalkoxycarbonyl, Arylalkoxycarbonyl, Heterocyclalkoxycarbonyl, Aryloxycarbonyl, Heterocyclyloxycarbonyl, Alkanoyloxy, Halogenalkanoyloxy, Cycloalkanoyloxy, Cycloalkylalkanoyloxy, Aroyloxy, Arylalkanoyloxy, Heterocycloylalkanoyloxy, Alkylsulfonyloxy, Arylsulfonyloxy, Hydroxy, Cyano, Thiocyano oder Nitro substituiert sein können, wobei die cycloaliphatischen, aromatischen oder heterocyclischen Ringsysteme unter den soeben genannten Substituenten unsubstituiert oder mit bis zu drei, im Falle von Fluor auch bis zur Maximalanzahl an gleichen oder verschiedenen Substituenten versehen sein können, und weiterhin, für den Fall, daß Y eine Gruppe NR⁵ bedeutet, R⁵ der Gruppe Y und R⁵ der Gruppe Z zu einem 5-8 gliedrigen heteroaliphatischen Ringsystem verknüpft sein können; oder, für den Fall, daß Z eine Gruppe NR^{5'} bedeutet, R⁵ und R^{5'} auch cyclisch zu einem 3-8 gliedrigen Ringsystem verknüpft sein kann und in diesem Ringsystem eine gesättigte Kohlenstoffeinheit durch Sauerstoff, Schwefel oder eine Gruppe NG ersetzt sein kann, worin G eine gegebenenfalls substituierte Phenylgruppe, (C₁-C₄)-Alkyl, (C₁-C₄)-Alkanoyl oder (C₁-C₄)-Alkoxycarbonyl bedeutet und dieses Ringsystem gegebenenfalls benzokondensiert sein kann, oder deren Tautomere und Salze.

2. Verbindung der Formel (I) gemäß Anspruch 1, in welcher

R¹ Wasserstoff, Halogen, (C₁-C₄)-Alkyl, (C₁-C₄)-Halogenalkyl oder (C₃-C₅)-Cycloalkyl bedeutet;

R² und R³ gleich oder verschieden sind und jeweils Wasserstoff; (C₁-C₄)-Alkyl, (C₁-C₄)-Halogenalkyl, (C₂-C₄)-Alkenyl, (C₂-C₄)-Halogenalkenyl, (C₂-C₄)-Alkinyl, (C₂-C₄)-Halogenalkinyl, Trimethylsilylalkinyl, (C₁-C₄)-Alkoxy, (C₁-C₄)-Halogenalkoxy, (C₁-C₄)-Alkoxy-(C₁-C₄)-alkyl, (C₁-C₄)-Halogenalkoxy-(C₁-C₄)-alkyl, (C₁-C₄)-Alkoxy-(C₁-C₄)-halogenalkyl, (C₁-C₄)-Halogenalkoxy-(C₁-C₄)-halogenalkyl, Halogen, Hydroxy, (C₁-C₄)-Hydroxyalkyl, (C₁-C₄)-Alkanoyl, (C₁-C₄)-Halogenalkanoyl, (C₃-C₅)-Cycloalkyl, (C₃-C₅)-Halogencycloalkyl, Cyano, (C₁-C₄)-Cyanalkyl, Nitro, (C₁-C₄)-Nitroalkyl, Thiocyno, (C₁-C₄)-Thiocyanoalkyl, (C₁-C₄)-Alkoxycarbonyl, (C₁-C₄)-Alkoxycarbonyl-(C₁-C₄)-alkyl, (C₁-C₄)-Halogenalkoxycarbonyl, (C₁-C₄)-Alkylthio, (C₁-C₄)-Alkylthio-(C₁-C₄)-alkyl, (C₁-C₄)-Halogenalkylthio, (C₁-C₄)-Alkylsulfinyl, (C₁-C₄)-Halogenalkylsulfinyl, (C₁-C₄)-Alkylsulfonyl, (C₁-C₄)-Halogenalkylsulfonyl, Amino, (C₁-C₄)-Alkylamino oder (C₁-C₄)-Dialkylamino bedeuten; oder

R² und R³ zusammen mit den Kohlenstoffatomen, an die sie gebunden sind, einen ungesättigten 5- oder 6-gliedrigen isocyclischen Ring bilden, der, falls es sich um einen 5-Ring handelt, an Stelle von CH₂ ein Sauerstoff- oder Schwefelatom enthalten kann oder der, falls es sich um einen 6-Ring handelt, an Stelle von einer oder zwei CH-Einheiten ein oder zwei Stickstoffatome enthalten kann und der gegebenenfalls durch 1, 2 oder 3 gleiche oder verschiedene Reste substituiert ist und diese Reste (C₁-C₄)-Alkyl, (C₁-C₄)-Halogenalkyl, Halogen, (C₁-C₄)-Alkoxy oder (C₁-C₄)-Halogenalkoxy bedeuten; oder

R² und R³ zusammen mit den Kohlenstoffatomen, an die sie gebunden sind, einen gesättigten 5-, 6- oder 7-gliedrigen isocyclischen Ring bilden, der an Stelle von einer oder zwei CH₂-Gruppen Sauerstoff und/oder Schwefel enthalten kann und der gegebenenfalls durch 1, 2 oder 3 (C₁-C₄)-Alkylgruppen substituiert ist, und

R⁵ (C₁-C₂₀)-Alkyl, (C₂-C₂₀)-Alkenyl, (C₂-C₂₀)-Alkinyl, Aryl oder Heterocycl

bedeutet, wobei die aufgeführten Aryl- oder Heterocyclyl-Reste unsubstituiert oder mit bis zu drei, im Falle von Fluor auch bis zur Maximalanzahl an gleichen oder verschiedenen Resten versehen sein können und in den genannten Alkyl-, Alkenyl- oder Alkinyl-Resten eine oder mehrere nicht benachbarte gesättigte Kohlenstoff-Einheiten durch eine Carbonyl-Gruppe oder durch Heteroatom-Einheiten, wie Sauerstoff, $S(O)_x$, mit $x = 0, 1$ oder 2 , NR^6 oder SiR^7R^8 ersetzt sein können, wobei R^6 Wasserstoff, (C_1-C_4) -Alkyl, (C_1-C_4) -Alkoxy oder (C_1-C_4) -Alkanoyl bedeutet und R^7 und R^8 (C_1-C_4) -Alkyl, bevorzugt Methyl, bedeuten, und worin darüber hinaus 3 bis 12 Atome dieser gegebenenfalls wie vorstehend modifizierten Kohlenwasserstoff-Reste einen Cyclus bilden können und diese Kohlenwasserstoff-Reste mit oder ohne die angegebenen Variationen, gegebenenfalls mit einem oder mehreren, im Falle von Halogen bis zur Maximalanzahl an gleichen oder verschiedenen Resten aus der Reihe Halogen, Aryl, Aryloxy, Arylthio, (C_3-C_8) -Cycloalkoxy, (C_3-C_8) -Cycloalkylthio, Heterocyclyl, Heterocyclxy, Heterocyclthio, (C_1-C_{12}) -Alkanoyl, (C_3-C_8) -Cycloalkanoyl, (C_2-C_{12}) -Halogenalkanoyl, Aroyl, Aryl- (C_1-C_4) -alkanoyl, (C_3-C_8) -Cycloalkyl- (C_1-C_4) -alkanoyl, Heterocyclyl- (C_1-C_4) -alkanoyl, (C_1-C_{12}) -Alkoxy carbonyl, (C_1-C_{12}) -Halogenalkoxycarbonyl, (C_3-C_8) -Cycloalkoxycarbonyl, (C_3-C_8) -Cylcoalkyl- (C_1-C_4) -alkoxycarbonyl-, Aryl- (C_1-C_4) -alkoxycarbonyl, Heterocyclyl- (C_1-C_4) -alkoxycarbonyl, Aryloxy carbonyl, Heterocyclxy carbonyl, (C_1-C_{12}) -Alkanoyloxy, (C_2-C_{12}) -Halogenalkanoylalkoxy, (C_3-C_8) -Cycloalkanoyloxy, (C_3-C_8) -Cycloalkyl- (C_1-C_4) -alkanoyloxy, Aroyloxy, Aryl- (C_1-C_4) -alkanoyloxy, Heterocyclyl- (C_1-C_4) -alkanoyloxy, (C_1-C_{12}) -Alkylsulfonyloxy, Arylsulfonyloxy, Hydroxy, Cyano, Thiocyano oder Nitro substituiert sein können, wobei die cycloaliphatischen, aromatischen oder heterocyclischen Ringsysteme unter den soeben genannten Substituenten unsubstituiert oder mit bis zu drei, im Falle von Fluor auch bis zur Maximalanzahl an gleichen oder verschiedenen Substituenten versehen sein können:
oder deren Tautomeren und Salze.

3. Verbindung der Formel (I) gemäß Anspruch 1 oder 2, in welcher
- R¹ Wasserstoff, Fluor, Chlor oder Methyl bedeutet;
- R² (C₁-C₄)-Alkyl, (C₁-C₄)-Alkenyl, (C₁-C₄)-Alkinyl, (C₁-C₄)-Halogenalkyl, Methoxymethyl oder Cyano bedeutet;
- R³ Wasserstoff, Halogen, Methyl, Ethyl, Ethinyl, Vinyl, Halogenvinyl, (C₁-C₂)-Fluoralkyl, Methoxy, Ethoxy oder Cyano bedeutet; oder
- R² und R³ zusammen mit den Kohlenstoffatomen, an die sie gebunden sind, einen gegebenenfalls substituierten ungesättigten 5- oder 6-gliedrigen Ring bilden, der im Falle des 5-Rings an Stelle einer CH₂-Einheit ein Schwefelatom enthalten kann; oder
- R² und R³ zusammen mit den Kohlenstoffatomen an die sie gebunden sind, einen gesättigten 5- oder 6-gliedrigen Ring bilden, der an Stelle einer CH₂-Einheit ein Schwefel- oder ein Sauerstoffatom enthalten kann;
- A CH oder N bedeutet;
- X NH oder Sauerstoff bedeutet;
- Y und Z gleich oder verschieden sind und jeweils Sauerstoff, Schwefel oder eine Gruppe NR⁵ oder NR⁵' bedeuten;
- R⁴ und R⁴' gleich oder verschieden sind und jeweils Wasserstoff oder Methyl bedeuten;
- m und n jeweils die Zahl 2 bedeutet;
- oder deren Tautomeren und Salze.

4. Verbindung der Formel (I) gemäß einem der Ansprüche 1 bis 3, in welcher
- R¹ Wasserstoff bedeutet;
- R² Methyl, Ethyl, Propyl, Isopropyl, (C₁-C₂)-Fluoralkyl, Cyclopropyl oder Methoxymethyl bedeutet;
- R³ Halogen, Methyl, Ethyl, Ethinyl, Vinyl, Fluorvinyl, Methoxy, Ethoxy oder Cyano bedeutet; oder

R² und R³ zusammen mit dem Ringsystem, an das sie gebunden sind, das Chinazolin- oder Chinolin-System bilden, das im carbocyclischen Teil

durch Fluor substituiert sein kann; oder

R² und R³ zusammen mit den Kohlenstoffatomen an die sie gebunden sind, einen gesättigten 6-gliedrigen Ring bilden, der an Stelle einer CH₂-Gruppe ein Sauerstoff- oder Schwefelatom enthalten kann;

R⁴ und R^{4'} Wasserstoff bedeutet;

oder deren Tautomeren und Salze.

5. Verbindung der Formel (I) gemäß einem der Ansprüche 1 bis 4, in welcher

R¹ Wasserstoff bedeutet;

R² Methyl, Ethyl, Propyl, Isopropyl, 1-Fluorethyl oder Methoxymethyl bedeutet;

R³ Fluor, Chlor, Brom, Cyano, Vinyl, Ethinyl oder Methoxy bedeutet; oder

R² und R³ zusammen mit dem Ringsystem, an das sie gebunden sind,

das Chinazolin-System bilden, das mit einem Fluoratom substituiert sein kann;

A N bedeutet;

X NH bedeutet;

Y und Z Sauerstoff oder Schwefel bedeuten;

R⁴ und R^{4'} Wasserstoff bedeutet;

m und n die Zahl 2 bedeutet;

oder deren Tautomeren und Salze.

6. Verbindung der Formel (I) gemäß einem der Ansprüche 1 bis 5, in welcher

R¹ Wasserstoff bedeutet;

R² Ethyl oder Methoxymethyl bedeutet;

R³ Fluor, Chlor, Brom oder Methoxy bedeutet;

A N bedeutet;

X NH bedeutet;

Y und Z Sauerstoff oder Schwefel bedeuten;

R⁴ und R^{4'} Wasserstoff bedeuten;

m und n die Zahl 2 bedeutet;

R⁵ (C₁-C₂₀)-Alkyl, (C₂-C₂₀)-Alkenyl, (C₂-C₂₀)-Alkinyl, Aryl oder Heterocyclyl

bedeutet, wobei die aufgeführten Aryl- oder Heterocycl-Reste unsubstituiert oder mit bis zu drei, im Falle von Fluor auch bis zur Maximalanzahl an gleichen oder verschiedenen Resten versehen sein können und in den genannten Alkyl-, Alkenyl- oder Alkinyl-Resten eine oder mehrere, nicht benachbarte gesättigte Kohlenstoff-Einheiten durch Heteroatom-einheiten, wie Sauerstoff oder SiR⁷R⁸ ersetzt sein können, wobei R⁷ und R⁸ (C₁-C₄)-Alkyl, bedeuten,

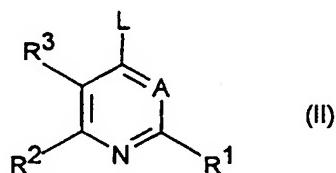
und worin darüber hinaus 3 bis 6 Atome dieser gegebenenfalls wie vorstehend modifizierten Kohlenwasserstoff-Reste einen Cyclus bilden können und diese Kohlenwasserstoff-Reste mit oder ohne die angegebenen Variationen, gegebenenfalls mit einem oder mehreren im Falle von Halogen bis zur Maximalanzahl an gleichen oder verschiedenen Resten aus der Reihe Halogen, Aryl, Aryloxy, Arylthio, (C₃-C₈)-Cycloalkoxy, (C₃-C₈)-Cycloalkylthio, Heterocycl, Heterocyclxy oder (C₁-C₂)-Alkoxy carbonyl substituiert sein können, wobei die wobei die cycloaliphatischen, aromatischen oder heterocyclischen Ringsysteme unter den soeben genannten Substituenten unsubstituiert oder mit bis zu drei, im Falle von Fluor auch bis zur Maximalanzahl an gleichen oder verschiedenen Substituenten versehen sein können;

oder deren Tautomeren und Salze.

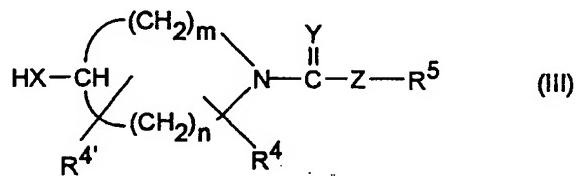
7. Verbindung der Formel (I) gemäß einem der Ansprüche 1 bis 6, in welcher R⁵ (C₁-C₁₅)-Alkyl, Aryl oder Heterocycl im Sinne von heteroaromatisches Ringsystem bedeutet, wobei der Aryl- oder Heterocycl-Rest unsubstituiert oder mit bis zu drei, im Falle von Fluor auch bis zur Maximalanzahl an gleichen oder verschiedenen Resten versehen sein kann und in dem genannten Alkyl-Rest eine oder mehrere, nicht benachbarte gesättigte Kohlenstoff-Einheiten durch Sauerstoff ersetzt sein können, und worin darüber hinaus 3 bis 8 Atome dieses gegebenenfalls wie vorstehend modifizierten Alkyl-Restes einen Cyclus bilden können und dieser Alkyl-Rest mit oder ohne die angegebenen Variationen, gegebenenfalls mit

einem oder mehreren Halogenatomen, im Falle von Fluor auch bis Maximalanzahl oder mit einem Aryl-Rest substituiert sein kann und dieser Aryl-Rest unsubstituiert oder mit bis zu drei, im Falle von Fluor auch bis zur Maximalanzahl an gleichen oder verschiedenen Substituenten versehen sein können;
oder deren Tautomeren und Salze.

8. Verfahren zur Herstellung von Verbindungen der Formel (I) gemäß einem der Ansprüche 1 bis 7, dadurch gekennzeichnet, daß man eine Verbindung der Formel (II),

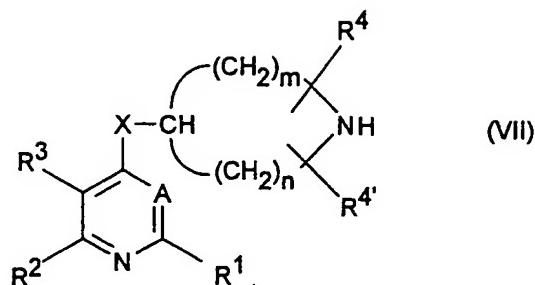


worin R^1 , R^2 , R^3 und A die unter Formel I angegebenen Bedeutungen haben und L eine Abgangsgruppe bedeutet, mit einem Nucleophil der Formel (III),



worin X , Y , Z , m , n , R^4 , R^4' und R^5 die oben unter Formel (I) angegebenen Bedeutungen haben, umsetzt und in den so oder auf andere Weise erhaltenen Verbindungen der Formel (I) gegebenenfalls das Pyridin- oder Pyrimidin-System oder die Piperidin-Seitenkette weiter derivatisiert und die so erhaltenen Verbindungen gegebenenfalls in ihre Salze überführt.

9. Verbindung der Formel (VII),



in welcher R¹, R², R³, A, X, m, n, R⁴ und R^{4'} die in Anspruch 1 zur Formel (I) angegebenen Bedeutungen haben.

10. Mittel, enthaltend mindestens eine Verbindung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 7 und mindestens ein Formulierungsmittel.

11. Fungizides Mittel gemäß Anspruch 10, enthaltend eine fungizid wirksame Menge mindestens einer Verbindung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 7 zusammen mit den für diese Anwendung üblichen Zusatz- oder Hilfsstoffen.

12. Insektizides, akarizides, ixodizides oder nematizides Mittel gemäß Anspruch 10, enthaltend eine wirksame Menge mindestens einer Verbindung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 7 zusammen mit den für diese Anwendung üblichen Zusatz- oder Hilfsstoffen.

13. Pflanzenschutzmittel, enthaltend eine fungizid, insektizid, akarizid oder nematizid wirksame Menge mindestens einer Verbindung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 7 und mindestens einem weiteren Wirkstoff aus der Reihe der Fungizide, Insektizide, Lockstoffe, Sterilantien, Akarizide, Nematizide und Herbizide zusammen mit für diese Anwendung üblichen Hilfs- und Zusatzstoffen.

14. Mittel zur Anwendung im Holzschutz oder als Konservierungsmittel in Dichtmassen, in Anstrichfarben, in Kühlsmiermitteln für die Metallbearbeitung oder in Bohr- und Schneidölen, enthaltend eine wirksame Menge mindestens einer Verbindung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 7 zusammen mit für diese Anwendungen üblichen Hilfs- und Zusatzstoffen.
15. Verbindung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 7 oder Mittel gemäß Anspruch 10 oder 13 zur Anwendung als Tierarzneimittel.
16. Verfahren zur Herstellung eines Mittels gemäß einem der Ansprüche 10 bis 15, dadurch gekennzeichnet, daß man den Wirkstoff und die weiteren Zusätze zusammen gibt und in eine geeignete Anwendungsform bringt.
17. Verwendung einer Verbindung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 7 oder Mittels gemäß einem der Ansprüche 10, 11, 13 und 14 als Fungizid.
18. Verwendung einer Verbindung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 7 oder eines Mittels gemäß einem der Ansprüche 10, 11 und 14 als Holzschutzmittel oder als Konservierungsmittel in Dichtmitteln, in Anstrichfarben, in Kühlsmiermitteln für die Metallbearbeitung oder in Bohr- und Schneideölen.
19. Verfahren zur Bekämpfung von phytopathogenen Pilzen, dadurch gekennzeichnet, daß man auf diese oder die von ihnen befallenen Pflanzen, Flächen oder Substrate oder auf Saatgut eine fungizid wirksame Menge einer Verbindung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 7 oder eines Mittels gemäß einem der Ansprüche 10, 11, 13 und 14 appliziert.

20. Verfahren zur Bekämpfung von Schadinsekten, Acarina, Mollusken und Nematoden, bei welchem man auf diese oder die von ihnen befallenen Pflanzen, Flächen oder Substrate eine wirksame Menge einer Verbindung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 7 oder eines Mittels gemäß einem der Ansprüche 10, 11 und 13 appliziert.
21. Verwendung von Verbindungen gemäß einem der Ansprüche 1 bis 7 oder eines Mittels gemäß einem der Ansprüche 10, 11 und 13 zur Bekämpfung von Schadinsekten, Acarina, Mollusken und Nematoden.
22. Saatgut, behandelt oder beschichtet mit einer wirksamen Menge einer Verbindung gemäß einem der Ansprüche 1 bis 7 oder eines Mittels gemäß einem der Ansprüche 10, 11 und 13.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No
PCT/EP 99/01944

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER	IPC 6 C07D401/12 A01N43/54	A01N43/40	C07D409/14	C07D401/14
-------------------------------------	----------------------------	-----------	------------	------------

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 6 C07D A01N

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	<p>M. L. CURTIN ET AL.: "Discovery and Evaluation of a Series of 3-Acylindole Imidazopyridine Platelet-Activating Factor Antagonists" J. MED. CHEM., vol. 41, no. 1, 1998, pages 74-95, XP002109994 * N-[1-(Ethoxycarbonyl)piperidin-4-yl]-3,4-diaminopyridin * page 91</p> <p>---</p> <p>-/-</p>	1,2,7

Further documents are listed in the continuation of box C.

Patent family members are listed in annex.

* Special categories of cited documents :

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

22 July 1999

Date of mailing of the international search report

Name and mailing address of the ISA
European Patent Office, P.B. 5818 Patenttaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Herz, C

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Internal Application No	PCT/EP 99/01944
-------------------------	-----------------

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	E. CARCELLER ET AL.: "Design, Synthesis, and Structure-Activity Relationship Studies of Novel 1-[(1-Acyl-4-piperidyl)methyl]-1H-2-methyl imidazo[4,5-c]pyridine Derivatives as Potent, Orally Active Platelet-Activating Factor Antagonists" J. MED. CHEM., vol. 39, no. 2, 1996, pages 487-493, XP002109995 * Schema 1 : compounds in the formula 10 and 1 * page 488 ---	1,2,7
X	US 5 567 711 A (G. S. SHEPPARD ET AL.) 22 October 1996 (1996-10-22) * Schema 4 * column 18, line 32 - line 46 ---	1,2,7
X	DE 195 04 367 A (BOEHRINGER MANNHEIM GMBH) 14 August 1996 (1996-08-14) * Compounds in the formula XII * page 15, line 5 - line 16 ---	9
Y	DE 42 08 254 A (HOECHST AG) 16 September 1993 (1993-09-16) cited in the application claims 1-19 ---	1-22
X	EP 0 191 603 A (FUJISAWA PHARMACEUTICAL CO., LTD.) 20 August 1986 (1986-08-20) examples 4,5,16 ---	9
X	EP 0 515 240 A (ELF SANOFI) 25 November 1992 (1992-11-25) example 2 ---	9
Y	DE 43 43 250 A (HOECHST SCHERING AGREVO GMBH) 1 June 1995 (1995-06-01) examples 1-17 ---	1-22
Y	WO 92 17452 A (KOREA RESEARCH INSTITUTE OF CHEMICAL TECHNOLOGY) 15 October 1992 (1992-10-15) * Tab. 1: Comp. 252, 325, 416, 508 * claims 1-3 ---	1,2,7
Y	DE 43 08 014 A (HOECHST AGEVO GMBH) 15 September 1994 (1994-09-15) claims 1-23 ---	1-22
X	EP 0 522 606 A (TAKEDA CHEMICAL INDUSTRIES, LTD.) 13 January 1993 (1993-01-13) example 11 ---	1,2,7

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Internal Application No
PCT/EP 99/01944

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 96 37473 A (HOECHST SCHERING AGREVO GMBH) 28 November 1996 (1996-11-28) claims 1-17 ---	1-22
Y	DE 43 31 179 A (HOECHST SCHERING AGREVO GMBH) 16 March 1995 (1995-03-16) claims 1-19 ---	1-22
Y	DE 43 31 181 A (HOECHST SCHERING AGREVO GMBH) 16 March 1995 (1995-03-16) claims 1-19 -----	1-22

INTERNATIONAL SEARCH REPORTInternational application No.
PCT / EP 99 / 01944**Box I Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 1 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. Claims Nos.: because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. Claims Nos.: 1-22 (all part)
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

See extra sheet further indications PCT/ISA/210

3. Claims Nos.: because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box II Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 2 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

1. As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. As all searchable claims could be searched without effort justifying an additional fee, this Authority did not invite payment of any additional fee.
3. As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest.
 No protest accompanied the payment of additional search fees.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Internat'l Application No

PCT/EP 99/01944

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 5567711	A	22-10-1996	AU 705237 B AU 5429596 A CA 2218020 A EP 0821685 A JP 11503758 T WO 9633196 A US 5654305 A US 5643922 A	20-05-1999 07-11-1996 24-10-1996 04-02-1998 30-03-1999 24-10-1996 05-08-1997 01-07-1997
DE 19504367	A	14-08-1996	AU 4788696 A CA 2212336 A WO 9624586 A EP 0808306 A US 5786371 A	27-08-1996 15-08-1996 15-08-1996 26-11-1997 28-07-1998
DE 4208254	A	16-09-1993	AU 671108 B AU 3746693 A BR 9306083 A CA 2131545 A,C CN 1076692 A WO 9319050 A EP 0631575 A HU 67295 A JP 2619606 B JP 7506347 T KR 128270 B MX 9301399 A PL 175078 B TR 27732 A US 5571815 A ZA 9301774 A	15-08-1996 21-10-1993 18-11-1997 30-09-1993 29-09-1993 30-09-1993 04-01-1995 28-03-1995 11-06-1997 13-07-1995 02-04-1998 01-11-1993 30-10-1998 28-06-1995 05-11-1996 30-09-1993
EP 191603	A	20-08-1986	AU 5270786 A DK 64386 A FI 860381 A GR 860316 A JP 61183283 A PH 22302 A SU 1450740 A US 4735952 A	14-08-1986 12-08-1986 12-08-1986 29-05-1986 15-08-1986 22-07-1988 07-01-1989 05-04-1988
EP 515240	A	25-11-1992	FR 2676054 A AT 158574 T AU 657321 B AU 1591892 A CA 2067924 A CS 9201328 A DE 69222352 D DE 69222352 T DK 515240 T ES 2109987 T FI 921950 A GR 3025277 T HU 65273 A,B IL 101762 A JP 5140103 A MX 9202026 A NO 178572 B	06-11-1992 15-10-1997 09-03-1995 05-11-1992 04-11-1992 18-11-1992 30-10-1997 09-04-1998 11-05-1998 01-02-1998 04-11-1992 27-02-1998 02-05-1994 16-10-1996 08-06-1993 01-11-1992 15-01-1996

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Intern	tional Application No
PCT/EP 99/01944	

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)		Publication date
EP 515240 A		NZ 242584 A		27-04-1995
		RU 2089547 C		10-09-1997
		US 5606065 A		25-02-1997
		US 5411971 A		02-05-1995
DE 4343250 A	01-06-1995	NONE		
WO 9217452 A	15-10-1992	EP 0533882 A		31-03-1993
		JP 7072176 B		02-08-1995
		US 5430153 A		04-07-1995
DE 4308014 A	15-09-1994	AU 680656 B		07-08-1997
		AU 6258394 A		11-10-1994
		CA 2158160 A		29-09-1994
		CN 1119436 A		27-03-1996
		WO 9421613 A		29-09-1994
		EP 0701552 A		20-03-1996
		JP 2875630 B		31-03-1999
		JP 8507539 T		13-08-1996
		PL 306092 A		06-03-1995
		US 5821244 A		13-10-1998
		ZA 9401715 A		13-10-1994
EP 522606 A	13-01-1993	AT 136296 T		15-04-1996
		AT 152102 T		15-05-1997
		CA 2068255 A		11-11-1992
		DE 69209576 D		09-05-1996
		DE 69209576 T		17-10-1996
		DE 69219354 D		28-05-1997
		DE 69219354 T		23-10-1997
		EP 0612729 A		31-08-1994
		JP 5125048 A		21-05-1993
		US 5389658 A		14-02-1995
		US 5457106 A		10-10-1995
		US 5561147 A		01-10-1996
		US 5767121 A		16-06-1998
		US 5246948 A		21-09-1993
WO 9637473 A	28-11-1996	AU 2616595 A		11-12-1996
DE 4331179 A	16-03-1995	AU 7615294 A		03-04-1995
		BR 9407541 A		31-12-1996
		CN 1130901 A		11-09-1996
		WO 9507891 A		23-03-1995
		EP 0719256 A		03-07-1996
		JP 9502446 T		11-03-1997
		TR 28674 A		16-01-1997
		US 5723450 A		03-03-1998
		ZA 9407040 A		02-05-1995
DE 4331181 A	16-03-1995	AU 7615194 A		03-04-1995
		BR 9407497 A		25-06-1996
		CN 1130902 A		11-09-1996
		WO 9507890 A		23-03-1995
		EP 0719255 A		03-07-1996
		JP 9506591 T		30-06-1997
		TR 28673 A		20-12-1996
		US 5650417 A		22-07-1997

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No
PCT/EP 99/01944

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
DE 4331181 A	-----	ZA 9407039 A	02-05-1995

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 99/01944

A. KLASIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES

IPK 6 C07D401/12 A01N43/54 A01N43/40 C07D409/14 C07D401/14

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierte Mindestprästoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 6 C07D A01N

Recherchierte aber nicht zum Mindestprästoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	M. L. CURTIN ET AL.: "Discovery an Evaluation of a Series of 3-Acylindole Imidazopyridine Platelet-Activating Factor Antagonists" J. MED. CHEM., Bd. 41, Nr. 1, 1998, Seiten 74-95, XP002109994 * N-'1-(Ethoxycarbonyl)piperidin-4-yl!-3,4-diaminopyridin * Seite 91 ---- -/-	1,2,7

Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

"A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist

"E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist

"L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)

"O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht

"P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann nahelegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

22. Juli 1999

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

17 AUG 1999

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde

Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Herz, C

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen
PCT/EP 99/01944

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	E. CARCELLER ET AL.: "Design, Synthesis, and Structure-Activity Relationship Studies of Novel 1-'(1-Acyl-4-piperidyl)methyl!-1H-2-methyl imidazo'4,5-c!pyridine Derivatives as Potent, Orally Active Platelet-Activating Factor Antagonists" J. MED. CHEM., Bd. 39, Nr. 2, 1996, Seiten 487-493, XP002109995 * Schema 1: Verbindungen der Formel 10 und 1 * Seite 488 ---	1,2,7
X	US 5 567 711 A (G. S. SHEPPARD ET AL.) 22. Oktober 1996 (1996-10-22) * Schema 4 * Spalte 18, Zeile 32 - Zeile 46 ---	1,2,7
X	DE 195 04 367 A (BOEHRINGER MANNHEIM GMBH) 14. August 1996 (1996-08-14) * Verbindungen der Formel XII * Seite 15, Zeile 5 - Zeile 16 ---	9
Y	DE 42 08 254 A (HOECHST AG) 16. September 1993 (1993-09-16) in der Anmeldung erwähnt Ansprüche 1-19 ---	1-22
X	EP 0 191 603 A (FUJISAWA PHARMACEUTICAL CO., LTD.) 20. August 1986 (1986-08-20) Beispiele 4,5,16 ---	9
X	EP 0 515 240 A (ELF SANOFI) 25. November 1992 (1992-11-25) Beispiel 2 ---	9
Y	DE 43 43 250 A (HOECHST SCHERING AGREVO GMBH) 1. Juni 1995 (1995-06-01) Beispiele 1-17 ---	1-22
Y	WO 92 17452 A (KOREA RESEARCH INSTITUTE OF CHEMICAL TECHNOLOGY) 15. Oktober 1992 (1992-10-15) * Tab. 1: Verb. 252, 325, 416, 508 * Ansprüche 1-3 ---	1,2,7
Y	DE 43 08 014 A (HOECHST AGEVO GMBH) 15. September 1994 (1994-09-15) Ansprüche 1-23 ---	1-22
X	EP 0 522 606 A (TAKEDA CHEMICAL INDUSTRIES, LTD.) 13. Januar 1993 (1993-01-13) Beispiel 11 ---	1,2,7

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 99/01944

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	WO 96 37473 A (HOECHST SCHERING AGREVO GMBH) 28. November 1996 (1996-11-28) Ansprüche 1-17 ---	1-22
Y	DE 43 31 179 A (HOECHST SCHERING AGREVO GMBH) 16. März 1995 (1995-03-16) Ansprüche 1-19 ---	1-22
Y	DE 43 31 181 A (HOECHST SCHERING AGREVO GMBH) 16. März 1995 (1995-03-16) Ansprüche 1-19 -----	1-22

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Int. nationales Aktenzeichen
PCT/EP 99/01944

Feld I Bemerkungen zu den Ansprüchen, die sich als nicht recherchierbar erwiesen haben (Fortsetzung von Punkt 2 auf Blatt 1)

Gemäß Artikel 17(2)a) wurde aus folgenden Gründen für bestimmte Ansprüche kein Recherchenbericht erstellt:

1. Ansprüche Nr. weil sie sich auf Gegenstände beziehen, zu deren Recherche die Behörde nicht verpflichtet ist, nämlich
2. Ansprüche Nr. 1-22 (all part)
weil sie sich auf Teile der internationalen Anmeldung beziehen, die den vorgeschriebenen Anforderungen so wenig entsprechen, daß eine sinnvolle internationale Recherche nicht durchgeführt werden kann, nämlich
siehe Zusatzblatt WEITERE ANGABEN PCT/ISA/210
3. Ansprüche Nr.
weil es sich dabei um abhängige Ansprüche handelt, die nicht entsprechend Satz 2 und 3 der Regel 6.4 a) abgefaßt sind.

Feld II Bemerkungen bei mangelnder Einheitlichkeit der Erfindung (Fortsetzung von Punkt 3 auf Blatt 1)

Die internationale Recherchenbehörde hat festgestellt, daß diese internationale Anmeldung mehrere Erfindungen enthält:

1. Da der Anmelder alle erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht auf alle recherchierbaren Ansprüche.
2. Da für alle recherchierbaren Ansprüche die Recherche ohne einen Arbeitsaufwand durchgeführt werden konnte, der eine zusätzliche Recherchengebühr gerechtfertigt hätte, hat die Behörde nicht zur Zahlung einer solchen Gebühr aufgefordert.
3. Da der Anmelder nur einige der erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren rechtzeitig entrichtet hat, erstreckt sich dieser internationale Recherchenbericht nur auf die Ansprüche, für die Gebühren entrichtet worden sind, nämlich auf die Ansprüche Nr.
4. Der Anmelder hat die erforderlichen zusätzlichen Recherchengebühren nicht rechtzeitig entrichtet. Der internationale Recherchenbericht beschränkt sich daher auf die in den Ansprüchen zuerst erwähnte Erfindung; diese ist in folgenden Ansprüchen erfaßt:

Bemerkungen hinsichtlich eines Widerspruchs

- Die zusätzlichen Gebühren wurden vom Anmelder unter Widerspruch gezahlt.
 Die Zahlung zusätzlicher Recherchengebühren erfolgte ohne Widerspruch.

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 99/01944

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 5567711 A	22-10-1996	AU 705237 B AU 5429596 A CA 2218020 A EP 0821685 A JP 11503758 T WO 9633196 A US 5654305 A US 5643922 A	20-05-1999 07-11-1996 24-10-1996 04-02-1998 30-03-1999 24-10-1996 05-08-1997 01-07-1997
DE 19504367 A	14-08-1996	AU 4788696 A CA 2212336 A WO 9624586 A EP 0808306 A US 5786371 A	27-08-1996 15-08-1996 15-08-1996 26-11-1997 28-07-1998
DE 4208254 A	16-09-1993	AU 671108 B AU 3746693 A BR 9306083 A CA 2131545 A,C CN 1076692 A WO 9319050 A EP 0631575 A HU 67295 A JP 2619606 B JP 7506347 T KR 128270 B MX 9301399 A PL 175078 B TR 27732 A US 5571815 A ZA 9301774 A	15-08-1996 21-10-1993 18-11-1997 30-09-1993 29-09-1993 30-09-1993 04-01-1995 28-03-1995 11-06-1997 13-07-1995 02-04-1998 01-11-1993 30-10-1998 28-06-1995 05-11-1996 30-09-1993
EP 191603 A	20-08-1986	AU 5270786 A DK 64386 A FI 860381 A GR 860316 A JP 61183283 A PH 22302 A SU 1450740 A US 4735952 A	14-08-1986 12-08-1986 12-08-1986 29-05-1986 15-08-1986 22-07-1988 07-01-1989 05-04-1988
EP 515240 A	25-11-1992	FR 2676054 A AT 158574 T AU 657321 B AU 1591892 A CA 2067924 A CS 9201328 A DE 69222352 D DE 69222352 T DK 515240 T ES 2109987 T FI 921950 A GR 3025277 T HU 65273 A,B IL 101762 A JP 5140103 A MX 9202026 A NO 178572 B	06-11-1992 15-10-1997 09-03-1995 05-11-1992 04-11-1992 18-11-1992 30-10-1997 09-04-1998 11-05-1998 01-02-1998 04-11-1992 27-02-1998 02-05-1994 16-10-1996 08-06-1993 01-11-1992 15-01-1996

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 99/01944

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
EP 515240 A		NZ 242584 A RU 2089547 C US 5606065 A US 5411971 A	27-04-1995 10-09-1997 25-02-1997 02-05-1995
DE 4343250 A	01-06-1995	KEINE	
WO 9217452 A	15-10-1992	EP 0533882 A JP 7072176 B US 5430153 A	31-03-1993 02-08-1995 04-07-1995
DE 4308014 A	15-09-1994	AU 680656 B AU 6258394 A CA 2158160 A CN 1119436 A WO 9421613 A EP 0701552 A JP 2875630 B JP 8507539 T PL 306092 A US 5821244 A ZA 9401715 A	07-08-1997 11-10-1994 29-09-1994 27-03-1996 29-09-1994 20-03-1996 31-03-1999 13-08-1996 06-03-1995 13-10-1998 13-10-1994
EP 522606 A	13-01-1993	AT 136296 T AT 152102 T CA 2068255 A DE 69209576 D DE 69209576 T DE 69219354 D DE 69219354 T EP 0612729 A JP 5125048 A US 5389658 A US 5457106 A US 5561147 A US 5767121 A US 5246948 A	15-04-1996 15-05-1997 11-11-1992 09-05-1996 17-10-1996 28-05-1997 23-10-1997 31-08-1994 21-05-1993 14-02-1995 10-10-1995 01-10-1996 16-06-1998 21-09-1993
WO 9637473 A	28-11-1996	AU 2616595 A	11-12-1996
DE 4331179 A	16-03-1995	AU 7615294 A BR 9407541 A CN 1130901 A WO 9507891 A EP 0719256 A JP 9502446 T TR 28674 A US 5723450 A ZA 9407040 A	03-04-1995 31-12-1996 11-09-1996 23-03-1995 03-07-1996 11-03-1997 16-01-1997 03-03-1998 02-05-1995
DE 4331181 A	16-03-1995	AU 7615194 A BR 9407497 A CN 1130902 A WO 9507890 A EP 0719255 A JP 9506591 T TR 28673 A US 5650417 A	03-04-1995 25-06-1996 11-09-1996 23-03-1995 03-07-1996 30-06-1997 20-12-1996 22-07-1997

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Int. nationales Aktenzeichen

PCT/EP 99/01944

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
DE 4331181 A	ZA 9407039 A		02-05-1995